



# Etude du phénomène d'absorption ou de rejet d'un renfort fibreux au cours de la solidification de l'aluminium liquide

Dominique Coupard

## ► To cite this version:

Dominique Coupard. Etude du phénomène d'absorption ou de rejet d'un renfort fibreux au cours de la solidification de l'aluminium liquide. Matériaux. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 1993. Français. NNT : 1993BOR10589 . tel-01203055

**HAL Id: tel-01203055**

**<https://theses.hal.science/tel-01203055>**

Submitted on 22 Sep 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives| 4.0 International License



# THÈSE

PRÉSENTÉE A

**L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1**

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES CHIMIQUES

Par Dominique Coupard

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : Sciences des Matériaux

**Etude du phénomène d'absorption ou de rejet d'un renfort fibreux au cours de la solidification de l'aluminium liquide**

Soutenue le : 19 juillet 1993

Après avis de :

**M. Y. BIENVENU**

Directeur de recherche

Rapporteur

**M. M. SUERY**

Directeur de recherche

Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de :

**M. P. HAGENMULLER**

Professeur

Président

**M. Y. BIENVENU**

Directeur de recherche

Rapporteur(s)

**M. M. SUERY**

Directeur de recherche

**M. J. ETOURNEAU**

Professeur

Examineur(s)

**M. J.M. QUENISSET**

Professeur

**M. F. GIROT**

Maître de conférences





*Sans vous deux, qui avez su donner  
le meilleur de vous-mêmes à vos  
trois enfants, cette thèse ne serait  
pas*

*Pour vous ma plus tendre affection*

*Ce travail a été effectué au Laboratoire de Chimie du Solide du C.N.R.S de l'Université de Bordeaux I. Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur P. HAGENMULLER pour m'avoir accueilli dans son Laboratoire et pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse.*

*Monsieur le Professeur J. ETOURNEAU, Directeur du Laboratoire de Chimie du Solide, m'a fait l'honneur d'examiner ce travail et de participer à mon jury de thèse; je tiens à l'en remercier vivement.*

*Monsieur Y. BIENVENU, Directeur de Recherche à l'Ecole Supérieure des Mines de Paris, m'a fait l'honneur de juger ce travail. Je lui adresse mes sincères remerciements et suis honoré de l'intérêt qu'il y a porté.*

*Monsieur M. SUERY, Directeur de Recherche à l'I.N.P de Grenoble, a bien voulu juger cette thèse. Je lui en suis très reconnaissant et tiens à le remercier pour les remarques pertinentes dont il m'a fait part.*

*Monsieur le Professeur J.M. QUENISSET, Directeur actuel du Laboratoire de l'I.U.T "Génie Mécanique" de l'Université de Bordeaux I, a assuré la direction scientifique de cette thèse. Je suis heureux de pouvoir lui exprimer ici ma profonde gratitude pour m'avoir guidé de ses précieux conseils et soutenu de ses encouragements au cours de ces années de recherche.*

*Monsieur F. GLROT, Maître de Conférences à l'Université de Bordeaux I a participé très étroitement à l'encadrement de cette thèse. Ses compétences scientifiques, ses qualités humaines et ses nombreux encouragements m'ont permis de mener à bien cette étude. Travailler avec lui fut pour moi un grand plaisir. Je tiens à l'en remercier sincèrement.*

*Je tiens à remercier Monsieur L. ALBINGRE pour son dévouement et son aide durant ces années de recherche.*

*Enfin, que tous les membres du L.C.S. et en particulier ceux du groupe "Composites à Matrice Métallique" trouvent ici le témoignage de ma reconnaissance pour leur constante sollicitude.*

# SOMMAIRE

**INTRODUCTION GENERALE..... 7**

**CHAPITRE I: BIBLIOGRAPHIE**

**INTRODUCTION..... 12**

**1.1 - INTERACTION DE PARTICULES AVEC UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GEOMETRIE PLANE..... 12**

1.1.1 - Critère de conductivité thermique..... 13

1.1.2 - Critère d'effusivité thermique..... 14

1.1.3 - Critère empirique de vitesse critique..... 16

1.1.4 - Modèle d'Uhlmann, Chalmers et Jackson (UCJ)..... 17

1.1.4.1 - Prise en compte des efforts de viscosité..... 18

**1.2 - INTERACTION DE PARTICULES AVEC UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GEOMETRIE COMPLEXE..... 20**

1.2.1 - Bilan des efforts exercés..... 20

1.2.2 - Prise en compte des écarts de conductivité thermique..... 22

1.2.3 - Influence de la fraction volumique de particules..... 23

1.2.4 - Confrontation expérimentale et discussion..... 23

**CONCLUSION..... 26**

**REFERENCES..... 27**

**CHAPITRE II: MODELISATION**

**INTRODUCTION..... 29**

**2.1 - DESCRIPTION DU PHENOMENE D'ABSORPTION OU DE REJET D'UN RENFORT FIBREUX PAR UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GEOMETRIE PLANE.....29**

**2.2 - PRESENTATION DES DIFFERENTS MECANISMES MIS EN JEU LORS DE L'INTERACTION D'UN RENFORT FIBREUX AVEC UNE INTERFACE SOLIDE-LIQUIDE..... 30**

2.1.1 - Les échanges thermiques au niveau du front de solidification..... 30

2.2.1.1 - Phénomène de rejet..... 31

2.2.1.1.1 - *l'axe de la fibre se positionne perpendiculairement au front de solidification (Figure II.3)..... 31*

2.2.1.1.2 - *l'axe de la fibre se positionne parallèlement au front de solidification (Figure II.4)..... 32*

2.2.1.2 - Phénomène d'absorption..... 32

2.2.1.2.1 - *l'axe de la fibre se positionne perpendiculairement au front de solidification (Figure II.5)..... 32*

2.2.1.2.2 - *l'axe de la fibre se positionne parallèlement au front de solidification(Figure II.6)..... 33*

2.2.2 - Variation d'énergies interfaciales..... 33

2.2.2.1 - Phénomène de rejet..... 33

2.2.2.2 - Phénomène d'absorption..... 33

2.2.2.2.1 - *l'axe de la fibre se positionne perpendiculairement au front de solidification (Figure II.5)..... 33*

2.2.2.2.2 - *l'axe de la fibre se positionne parallèlement au front de solidification (Figure II.7)..... 34*

2.2.3 - Les forces appliquées au niveau du front de solidification..... 35

2.2.3.1 - Principaux efforts: Force de gravité - poussée d'Archimède - force de viscosité..... 35

2.2.3.1.1 - *l'axe de la fibre est parallèle à la direction de décantation..... 39*

2.2.3.1.2 - *l'axe de la fibre est perpendiculaire à la direction de décantation..... 39*

2.2.3.1.3 - *phénomène de rejet..... 41*

2.2.3.1.4 - *phénomène d'absorption..... 42*

2.2.3.2 - Efforts complémentaires..... 42

2.2.3.2.1 - *l'effort de Darcy..... 43*

2.2.3.2.2 - *l'effort de compression..... 45*

2.2.4 - Ségrégation d'éléments d'alliages au cours d'une expérience de solidification dirigée.....	46
<b>2.3 - DEVELOPPEMENT DU MODELE.....</b>	<b>47</b>
2.3.1 - Détermination des grandeurs $\Delta G_F^2 = G_F^2 - G_F^1$ et $\Delta G_S^2 = G_S^2 - G_S^1$ .....	48
2.3.1.1 - Etude des transferts thermiques à vitesse de solidification nulle.....	48
2.3.1.1.1 - La conductivité thermique $\lambda_L$ du liquide est supérieure à celle de la fibre $\lambda_F$ .....	49
2.3.1.1.2 - La conductivité thermique $\lambda_L$ du liquide est inférieure à celle de la fibre $\lambda_F$ .....	51
2.3.1.2 - Phénomène de rejet.....	51
2.3.1.3 - phénomène d'absorption.....	54
2.3.2 - Expressions de la variation d'énergie de Gibbs $\Delta G_1^2$ pour chacun des cas étudiés.....	56
2.3.2.1 - Cas d'une fibre de conductivité thermique $\lambda_F > \lambda_L$ dont l'axe est perpendiculaire au front de solidification.....	56
2.3.2.2 - Cas d'une fibre de conductivité thermique $\lambda_F < \lambda_L$ dont l'axe est perpendiculaire au front de solidification.....	57
2.3.2.3 - Cas d'une fibre de conductivité thermique $\lambda_F > \lambda_L$ dont l'axe est parallèle au front de solidification.....	57
2.3.2.4 - Cas d'une fibre de conductivité thermique $\lambda_F < \lambda_L$ dont l'axe est parallèle au front de solidification.....	57
2.3.3 - Etude de la fonction $\Delta G_1^2 = f(y)$ pour le cas où l'axe du renfort fibreux est perpendiculaire à l'interface S/L.....	58
2.3.3.1 - Cas n°1: $k > 0 - C_2 > 0 - C_1 < 0$ avec $ C_1  > C_2$ .....	58
2.3.3.2 - Cas n°2: $k > 0 - C_2 > 0 - C_1 < 0$ avec $ C_1  < C_2$ .....	59
2.3.3.3 - Cas n°3: $k > 0 - C_2 > 0 - 0 < C_1 < C_2 / e^2$ .....	60
2.3.3.4 - Cas n°4: $k > 0 - C_2 > 0 - C_1 > C_2 / e^2$ .....	61
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>64</b>
<b>REFERENCES.....</b>	<b>65</b>

# CHAPITRE III: PARTIE EXPERIMENTALE

- INTRODUCTION..... 67
- 3.1 - ELABORATION..... 67
  - 3.1.1 - Choix de la matrice..... 67
    - 3.1.1.1 - Interaction d'un renfort fibreux court avec un front de solidification plan..... 67
  - 3.1.2 - Choix et préparation des renforts fibreux..... 68
    - 3.1.2.1 - choix des renforts fibreux..... 68
      - 3.1.2.1.1 - *Influence de la conductivité thermique de la fibre*..... 68
      - 3.1.2.1.2 - *Influence du diamètre de la fibre*..... 69
      - 3.1.2.1.3 - *Influence de la masse volumique du renfort fibreux*..... 70
    - 3.1.2.2 - Préparation des renforts fibreux..... 70
      - 3.1.2.2.1 - *Les fibres de faible diamètre*..... 70
      - 3.1.2.2.2 - *Les renforts de gros diamètre*..... 71
  - 3.1.3 - Elaboration et mise en forme des matériaux..... 71
    - 3.1.3.1 - Elaboration des matériaux..... 71
      - 3.1.3.1.1 - *Brassage en phase semi-solide (rhéomoulage) ou liquide*..... 71
      - 3.1.3.1.2 - *Squeeze casting ou forgeage liquide*..... 73
    - 3.1.3.2 - Mise en forme des matériaux..... 73
  - 3.1.4 - Caractérisation des matériaux..... 74
    - 3.1.4.1 - Vérification de l'homogénéité du barreau en terme de fraction volumique..... 74
    - 3.1.4.2 - Taille des fibres..... 74
- 3.2 - TRAITEMENT DE SOLIDIFICATION DIRIGEE..... 76
  - 3.2.1 - Appareillage utilisé..... 76
  - 3.2.2 - Mode opératoire..... 79
    - 3.2.2.1 - Condition de vitesse de translation faible..... 79
    - 3.2.2.2 - Condition de vitesse de translation élevée..... 84
  - 3.2.3 - Plan des manipulations..... 89
- 3.3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX.....89
  - 3.3.1 - Système A5/SiC (Nicalon)-(Figure III.17, III.18)..... 89
  - 3.3.2 - Système A5/alumine (FP)-(Figure III.19)..... 94
  - 3.3.3 - Système A5/carbone (P100)-(Figure III.20)..... 96



3.3.4 - Système A5/SiC ( $\sigma$ )-(Figure III.21).....	96
3.3.5 - Système A5/Bore (W)-(Figure III.22).....	99
<b>3.4 - INTERPRETATION DES RESULTATS</b> .....	99
3.4.1 - Influence des conditions de solidification.....	99
3.4.1.1 - <u>Influence de la vitesse de croissance <math>V_y</math></u> .....	99
3.4.1.2 - <u>Influence du gradient thermique <math>G_{L0}</math></u> .....	105
3.4.2 - Influence des caractéristiques physiques et géométriques du renfort.....	107
3.4.2.1 - <u>Influence de la conductivité thermique <math>\lambda_F</math> du renfort fibreux ou filamenteux</u> .....	107
3.4.2.2 - <u>Influence de la capacité calorifique volumique <math>\rho_F.C_F</math> du renfort fibreux ou filamenteux</u> .....	109
3.4.2.3 - <u>Influence du rayon <math>r_F</math> du renfort fibreux ou filamenteux</u> .....	110
3.4.2.4 - <u>Influence de la masse volumique <math>\rho_F</math> du renfort fibreux ou filamenteux</u> .....	111
3.4.3 - Influence de la fraction volumique $V_F$ de renfort fibreux ou filamenteux.....	113
<b>CONCLUSION</b> .....	115
<b>REFERENCES</b> .....	118
<b>CONCLUSION GENERALE</b> .....	120
<b>ANNEXES</b> .....	127

# **INTRODUCTION GENERALE**

# INTRODUCTION GENERALE

Les matériaux composites à matrice d'aluminium communément appelés MCMA peuvent aujourd'hui prétendre infiltrer les secteurs industriels tels que l'automobile pour des applications à moyenne température, dans la mesure où le surcoût qu'ils entraînent par rapport aux matériaux traditionnels reste modeste ou justifié par une amélioration importante des propriétés recherchées. Cette tendance a été mise en avant au cours des dernières années par le développement de collaborations entre industriels et chercheurs, manifestant ainsi l'intérêt que suscitent ces nouveaux matériaux.

A ce jour, les MCMA sont en concurrence directe avec les matériaux traditionnels existants à savoir, (i) les alliages métalliques légers représentés principalement par l'aluminium ou le magnésium, (ii) les matériaux composites à matrice organique. Le besoin des secteurs industriels telles que l'aéronautique, l'aérospatiale ou l'automobile en matériaux associant de bonnes caractéristiques à une faible densité a permis de repousser les performances des matériaux traditionnels à leur dernière limite. Toutefois, ces derniers présentent encore une faible rigidité et une tenue à la fatigue modeste. Dans le cas des alliages d'aluminium et de magnésium, on note également une chute brutale de leurs caractéristiques mécaniques dès 200°C. Enfin, les matériaux composites à matrice organique sont limités par leur faible tenue en température autorisant un domaine d'utilisation jusqu'à 200-300°C.

Face à ces inconvénients et au soucis d'une indispensable avancée technologique, il convient aujourd'hui d'envisager très sérieusement leur succession. L'apparition récente des MCMA au sein de certains véhicules commercialisés pourrait bien constituer la solution à bien des exigences, l'exemple le plus marquant étant sans aucun doute le développement par HONDA d'un moteur au sein duquel la culasse est en alliage d'aluminium renforcé par des fibres de carbone et d'alumine.

L'introduction d'un renfort fibreux court ou particulaire au sein d'une matrice base aluminium est donc un moyen particulièrement efficace pour améliorer les caractéristiques du métal tout en conservant, ce qui est primordial, des densités faibles souvent inférieures à celles de la matrice seule. Par rapport aux alliages d'aluminium, les MCMA devraient présenter:

- une amélioration de la rigidité  $E$  et donc une bonne rigidité spécifique  $E/\rho$ ;
- une meilleure tenue en température (jusqu'à 350-400°C) et à l'environnement (insensible aux ultraviolet et à l'humidité) par rapport aux composites à matrice organique;
- une augmentation de la dureté;
- une meilleure tenue en fatigue;
- une résistance à l'usure améliorée;

- un coefficient de dilatation modulable en fonction des applications (par l'intermédiaire d'un contrôle de la fraction volumique);
- une augmentation des propriétés mécaniques à chaud.

Certains MCMA, et en particulier ceux à renforts particuliers, se présentent maintenant en temps que matériaux à faible coût aussi bien grâce au faible prix des matériaux de base (l'aluminium et le renfort céramique particulière), qu'au coût modéré des procédés d'élaboration que sont principalement ceux dérivés des techniques de la fonderie (rhéomoulage ou squeeze-casting). Par analogie aux alliages d'aluminium, il est également possible de transformer ces matériaux par extrusion ou laminage.

D'un point de vue commercial, tous ces avantages sont donc suffisamment importants pour qu'aujourd'hui, les MCMA sortent du cadre de matériaux de laboratoire et laissent entrevoir surtout dans le secteur automobile, des possibilités d'applications concrètes. Parmi elles, on peut citer:

- l'étrier de frein pour lequel on cherche à améliorer la rigidité et à obtenir par l'emploi d'un renfort conducteur thermique, une dissipation de chaleur élevée;
- le maître cylindre de frein où la résistance à l'usure est particulièrement améliorée par l'emploi de MCMA à renforts particuliers.

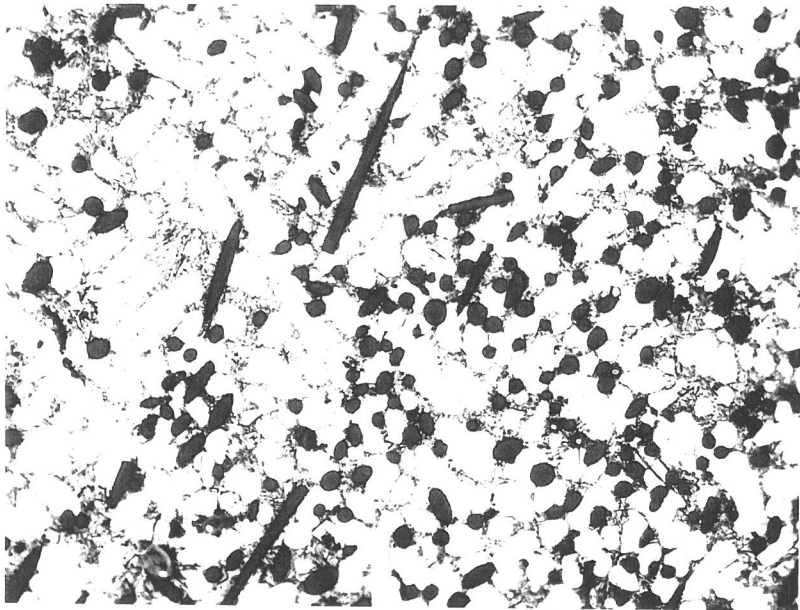
D'un point de vue microstructural, les principales exigences à satisfaire concernent l'obtention (i) de conditions de transfert de charge renfort/matrice suffisamment bonnes pour que l'effort appliqué aux renforts soit distribué de manière homogène par la matrice, (ii) d'une distribution uniforme du renfort au sein du matériau.

Le transfert de charge renfort/matrice peut être d'origine chimique résultant des réactions entre ces deux constituants principalement lors de l'élaboration ou mécanique dans le cas où le coefficient de dilatation du renfort est faible devant celui de la matrice.

Pour les matériaux composites à renfort discontinu, la distribution du renfort au sein du matériau est contrôlée par certains phénomènes physiques telles que l'agglomération, la sédimentation ou le rejet des fibres par le front de solidification. Ils peuvent conduire à une ségrégation du renfort au sein du matériau dont découle une hétérogénéité des propriétés mécaniques.

L'agglomération du renfort fibreux est principalement fonction de la taille du renfort et des énergies interfaciales fibre/matrice liquide mises en jeu. Un moyen particulièrement efficace d'inhiber ce phénomène consiste à (i) choisir un renfort de diamètre plutôt important c'est à dire généralement supérieur au micron, (ii) augmenter le mouillage fibre/matrice.

La sédimentation du renfort résulte des différences de masse volumique entre la matrice liquide et les fibres ou particules. La solution la plus simple permettant d'éliminer ce phénomène consiste à choisir un renfort de densité égale ou proche de celle de la matrice liquide.



**Figure 1:** Microstructure d'un matériau composite à matrice d'alliage d'aluminium (AS7G06) renforcé par des fibres courtes de carbure de silicium (Nicalon) et élaboré par rhéomoulage.

On peut également travailler sous champ gravitationnel faible même si cette méthode est beaucoup moins simple d'usage.

Le troisième point sur lequel il convient de porter une attention toute particulière est le comportement du renfort au voisinage de l'interface S/L. Il est en effet susceptible d'être absorbé ou rejeté lors de la progression du front de solidification. Pour cerner l'intérêt que revêt la compréhension de ce phénomène, il convient dans un premier temps, d'observer la microstructure d'un MCMA élaboré par rhéomoulage (Figure 1), c'est à dire par incorporation du renfort court dans un alliage à l'état semi-solide fortement brassé. La figure 1 nous permet de distinguer trois constituants:

- une phase primaire solide globulaire riche en aluminium ( $Al-\alpha$ );
- un constituant eutectique résultant de la coprécipitation de la solution solide et d'aiguilles ou de globules de composé intermétallique;
- des fibres céramiques courtes systématiquement situées dans les espaces interglobulaires c'est à dire dans l'eutectique ainsi que le montre la figure 1.

Après avoir décrit cette microstructure, il semble légitime de se demander pourquoi le renfort est localisé dans la phase eutectique et non dans les globules d'aluminium  $\alpha$ . En fait, il a tout simplement subi un phénomène de rejet par l'interface S/L. Au sein du matériau en cours de solidification, chaque renfort s'est trouvé à un moment donné, en contact avec des globules d'aluminium croissant dans le liquide. A ce moment là, le front de solidification matérialisé par l'interface existant entre la matrice liquide et la phase  $\alpha$  a repoussé le renfort dans la zone du matériau se solidifiant en dernier c'est à dire la zone où coexiste le constituant eutectique.

Ce phénomène de rejet du renfort par l'interface S/L d'un alliage d'aluminium peut principalement engendrer deux problèmes cruciaux qui sont d'une part, une ségrégation des fibres ou particules au sein du matériau, d'autre part, des propriétés mécaniques non optimisées en raison de la localisation du renfort dans l'eutectique.

Le premier point s'avère d'une grande importance dans la mesure où les hétérogénéités de fraction volumique conduisent à une diminution des propriétés mécaniques du matériau composite.

Le second point n'en demeure pas moins important puisque la localisation du renfort fibreux dans l'eutectique constitue une source d'amorce de rupture en raison des importantes contraintes résiduelles et de la fragilité de ce constituant accrue par la présence des fibres. Le potentiel de renforcement de la fibre n'est alors que partiellement exploité. L'amélioration des propriétés mécaniques peut donc être envisagée grâce à:

- l'utilisation de matrices très ductiles ( aluminium pur, ...);
- l'introduction du renfort dans une zone du matériau plus ductile à savoir la phase primaire solide.



La première solution ne présente que très peu d'intérêts dans la mesure où l'aluminium pur dispose, comparativement à ses alliages, de mauvaises propriétés mécaniques et s'avère plutôt mal adapté aux opérations de coulée.

La seconde solution consistant à introduire le renfort dans la phase primaire solide d'un alliage d'aluminium s'avère cependant beaucoup plus intéressante puisqu'elle permettrait d'augmenter les caractéristiques mécaniques du matériau composite en utilisant une matrice présentant au départ des propriétés intéressantes par rapport à l'aluminium pur.

Suite à cette observation, il nous a semblé intéressant de réfléchir plus en détail sur le comportement d'un renfort au voisinage d'un front de solidification avec pour objectif principal de comprendre les phénomènes qui le régissent. Dans un premier temps, une étude bibliographique faisant l'objet du chapitre I a permis d'appréhender le phénomène d'absorption ou de rejet de particules de nature très diverses par une interface S/L de géométrie plane (paragraphe I.1) et déstabilisée (paragraphe I.2).

Les conclusions de ce premier chapitre ont particulièrement mis en valeur la complexité de l'étude du phénomène d'absorption ou de rejet d'un renfort par un front de solidification. Dans ces conditions, il nous est apparu préférable dans le cadre d'un premier travail, de se borner à la compréhension du comportement d'un renfort au voisinage d'une interface S/L plane résultant de la solidification d'une matrice d'aluminium quasi-pur de type A5. Ce travail, ayant pour objectif principal de mettre en évidence le taux d'influence des paramètres cités précédemment, nous permettrait par la suite d'utiliser les connaissances acquises sur l'interaction renfort/front de solidification plan pour comprendre le comportement de fibres ou particules au voisinage d'une interface S/L déstabilisée.

Une approche théorique du phénomène étudié nous a conduit dans le chapitre II à développer un modèle (i) prenant en compte les caractéristiques physiques ou géométriques du renfort et les conditions de solidification, (ii) proposant des tendances concernant l'influence de chacun de ces paramètres.

Enfin, une étude expérimentale relatée dans le chapitre III est effectuée sur plusieurs systèmes fibres/matrice d'aluminium quasi-pur dans le but de confronter les résultats expérimentaux aux prédictions du modèle développé au chapitre II.

# CHAPITRE I

## BIBLIOGRAPHIE

### INTRODUCTION

#### 1.1 - INTERACTION DE PARTICULES AVEC UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GEOMETRIE PLANE

- 1.1.1 - Critère de conductivité thermique
- 1.1.2 - Critère d'effusivité thermique
- 1.1.3 - Critère empirique de vitesse critique
- 1.1.4 - Modèle d'Uhlmann, Chalmers et Jackson (UCJ)
  - 1.1.4.1 - Prise en compte des efforts de viscosité

#### 1.2 - INTERACTION DE PARTICULES AVEC UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GÉOMÉTRIE COMPLEXE

- 1.2.1 - Bilan des efforts exercés
- 1.2.2 - Prise en compte des écarts de conductivité thermique
- 1.2.3 - Influence de la fraction volumique de particules
- 1.2.4 - Confrontation expérimentale et discussion

### CONCLUSION

### REFERENCES



système matrice/particule	masse volumique matrice (g/cm <sup>3</sup> )	masse volumique particule (g/cm <sup>3</sup> )	$\sigma_{PS}$ *1 E-03 (J/m <sup>2</sup> )	$\sigma_{PL}$ *1 E-03 (J/m <sup>2</sup> )	$\sigma_{PS} - \sigma_{PL}$ *1 E-03 (J/m <sup>2</sup> )	prédictions basées sur le modèle thermodynamique	résultats expérimentaux
Biphényl/teflon	0.99	2.1	1.3	3.9	- 2.6	absorption	absorption
Biphényl/polystyrène	0.99	0.4	0.1	0.2	- 0.1	absorption	absorption
Biphényl/nylon	0.99	1.15	3.8	1.3	+ 2.5	rejet	rejet
Naphtalène/teflon	1.14	2.1	1.8	4.5	- 2.7	absorption	absorption
Naphtalène/polystyrène	1.14	0.4	0	0.4	- 0.4	absorption	absorption
Naphtalène/nylon	1.14	1.15	3.1	1	+ 2.1	rejet	rejet

**Tableau I.1:** Prédictions du modèle thermodynamique et résultats expérimentaux sur quelques systèmes matrice/particule d'après [1].

## INTRODUCTION:

Contrairement à la ségrégation d'éléments d'alliage au cours d'un processus de solidification, le phénomène d'absorption ou de rejet d'une phase solide au cours de la progression d'un front de solidification a suscité peu de travaux. Ceux-ci ont néanmoins conduit à quelques modèles de comportement sur des systèmes comportant une phase solide de type particulière au voisinage d'une interface solide/liquide de géométrie variable.

### 1.1 - INTERACTION DE PARTICULES AVEC UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GEOMETRIE PLANE:

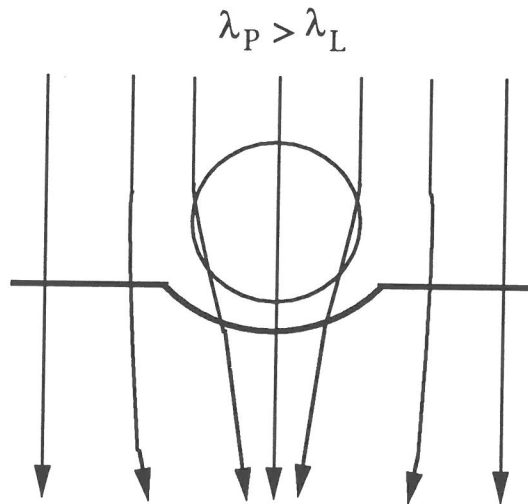
Les premiers travaux ont été développés sur des matrices de type organique tels que le biphenyl ou le naphthalène, en présence de particules de nature aussi diverses que le téflon, le polystyrène ou le nylon par exemple. Des expériences de solidification dirigée ont mis en évidence la géométrie plane que prend l'interface solide/liquide pour les conditions de solidification considérées. Omenyi et Neumann [1] remarquent alors une prédominance des phénomènes thermodynamiques d'interface pour des diamètres de particules de quelques microns et des faibles vitesses de progression du front de solidification ( $V_f < 10 \mu\text{m/s}$ ) [6],[7]. Le modèle thermodynamique proposé considère alors que l'absorption de particules par une interface solide/liquide s'accompagne d'une variation globalement négative de l'énergie de Gibbs s'exprimant par la relation suivante :

$$\sigma_{PS} - \sigma_{PL} < 0 \quad (\text{I.1})$$

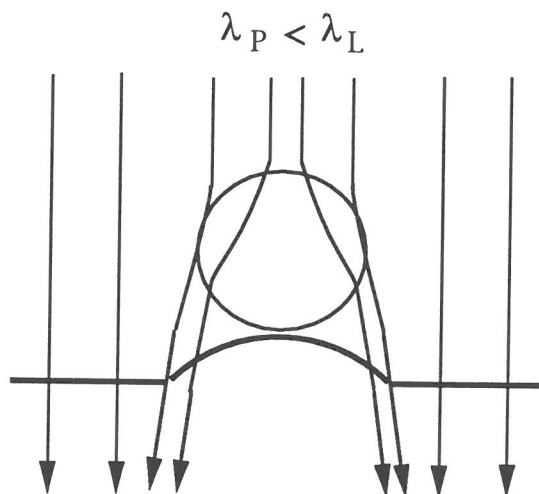
où  $\sigma_{SP}$  et  $\sigma_{PL}$  représentent respectivement les énergies interfaciales particule/solide et particule/liquide.

Ainsi, l'absorption ou le rejet de particules a pu être prédit pour les quelques systèmes reportés au tableau I.1.

La différence de masse volumique existant entre la matrice à l'état liquide et les diverses particules utilisées est un des principaux obstacles dans l'étude expérimentale du phénomène d'absorption ou de rejet. En effet, au cours d'une expérience de solidification dirigée verticale, toute sédimentation des particules conduit à des gradients de fraction volumique au sein de l'échantillon liquide et se traduit donc par une interaction massive de particules avec l'interface solide/liquide dans la zone de ségrégation du matériau. Omenyi et Neumann ont donc réalisé un appareillage de solidification horizontale dans lequel la sédimentation fait place à un phénomène de frottement des particules sur les parois, celui ci étant supposé négligeable.



**Figure I.1:** Allure du flux thermique au niveau du front de solidification pour  $\lambda_P > \lambda_L$  d'après [9].



**Figure I.2:** Allure du flux thermique au niveau du front de solidification pour  $\lambda_P < \lambda_L$  d'après [9].

Quelle que soit la matrice organique utilisée, les observations microscopiques à faible vitesse de croissance mettent en évidence que :

- les particules de téflon sont instantanément absorbées;
- les particules de polystyrène de géométrie non sphérique prennent, au contact du front de solidification, une orientation bien déterminée pour ensuite être absorbées;
- enfin, les particules de nylon sont rejetées par le front de solidification. Les rencontres entre particules forment alors des amas qui peuvent par la suite être soit absorbés, soit rejetés.

Un bon accord entre les prédictions du modèle thermodynamique et les observations expérimentales tend à valider ce modèle. Malheureusement, pour certains systèmes, il est souvent difficile d'appréhender les valeurs d'énergies interfaciales. De ce fait, il est apparu nécessaire de développer d'autres modèles; en particulier, un calcul empirique simple, basé sur des grandeurs physiques plus accessibles, a permis de proposer un modèle thermique qui recourt à deux critères brièvement présentés dans ce qui suit.

#### 1.1.1 - Critère de conductivité thermique:

Le critère proposé par Zubko [2],[3], considère qu'il y a absorption de particules par un front de solidification plan si:

$$\frac{\lambda_P}{\lambda_L} > 1 \tag{I.2}$$

où  $\lambda_P$  et  $\lambda_L$  représentent les conductivités thermiques respectivement des particule et liquide (W/m.K).

Ce critère, destiné à remplacer le modèle thermodynamique, n'est applicable que pour les faibles vitesses  $V_y$  de progression du front de solidification ( $V_y < \lambda_L / k.r_p$ ). Dans cette relation,  $r_p$  représente le rayon de la particule et  $k$ , une constante égale à l'unité s'exprimant en  $J/m^3.K$

L'explication physique de ce critère réside dans la comparaison du flux thermique traversant la particule par rapport au flux thermique adjacent ainsi que le schématisent les figures I.1 et I.2.

Ainsi, lorsque  $\lambda_P/\lambda_L > 1$ , le flux de chaleur traversant la particule est supérieur au flux thermique dans le liquide avoisinant. Un cratère peut alors se développer au niveau du front solide, favorisant ainsi l'absorption (Figure I.1).

système matrice/particule	$\sigma_{PS} - \sigma_{PL}$ *1 E-03 (J/m2)	prédictions basées sur le modèle thermodynamique	$\frac{\lambda_P}{\lambda_L}$	prédictions basées sur le critère de conductivité thermique	résultats expérimentaux
Byphényl/téflon	- 2.6	absorption	1.4	absorption	absorption
Byphényl/polystyrène	- 0.1	absorption	0.9	rejet	absorption
Byphényl/nylon	+ 2.5	rejet	0.04	rejet	rejet
Naphtalène/téflon	- 2.7	absorption	1.3	absorption	absorption
Naphtalène/polystyrène	- 0.4	absorption	0.9	rejet	absorption
Naphtalène/nylon	+ 2.1	rejet	0.04	rejet	rejet

**Tableau I.2:** Prédictions du critère de conductivité thermique et résultats expérimentaux sur quelques systèmes matrice/particule d’après [1],[6].

Au contraire, si  $\lambda_P/\lambda_L < 1$ , le flux de chaleur traversant la particule est faible devant le flux thermique adjacent. Une perturbation convexe témoignant d'un rejet possible peut alors apparaître au niveau de l'interface solide/liquide (Figure I.2).

Les prédictions basées sur ce critère sont comparées dans le tableau I.2 aux résultats obtenus par Omenyi et Neumann avec le modèle thermodynamique.

Le critère de conductivité thermique permet de prédire avec succès la plupart des résultats obtenus par Omenyi et Neumann. En revanche, l'inexactitude de ce critère concernant les systèmes biphenyl/polystyrène et naphthalène/polystyrène met en évidence ses limites au voisinage de la transition absorption/rejet défini par  $\lambda_P / \lambda_L = 1$ .

### 1.1.2 - Critère d'effusivité thermique:

A la suite de cette observation, Rohatgi [4],[8] propose une amélioration du critère précédent destinée à affiner les prédictions lorsque les conductivités thermiques des matrice et particule sont voisines. Une nouvelle approche prédit l'absorption de particules par une interface solide/liquide lorsque le rapport entre les effusivités thermiques du renfort et du liquide est supérieur à 1:

$$\frac{\sqrt{\lambda_P \cdot C_P \cdot \rho_P}}{\sqrt{\lambda_L \cdot C_L \cdot \rho_L}} > 1 \tag{I.3}$$

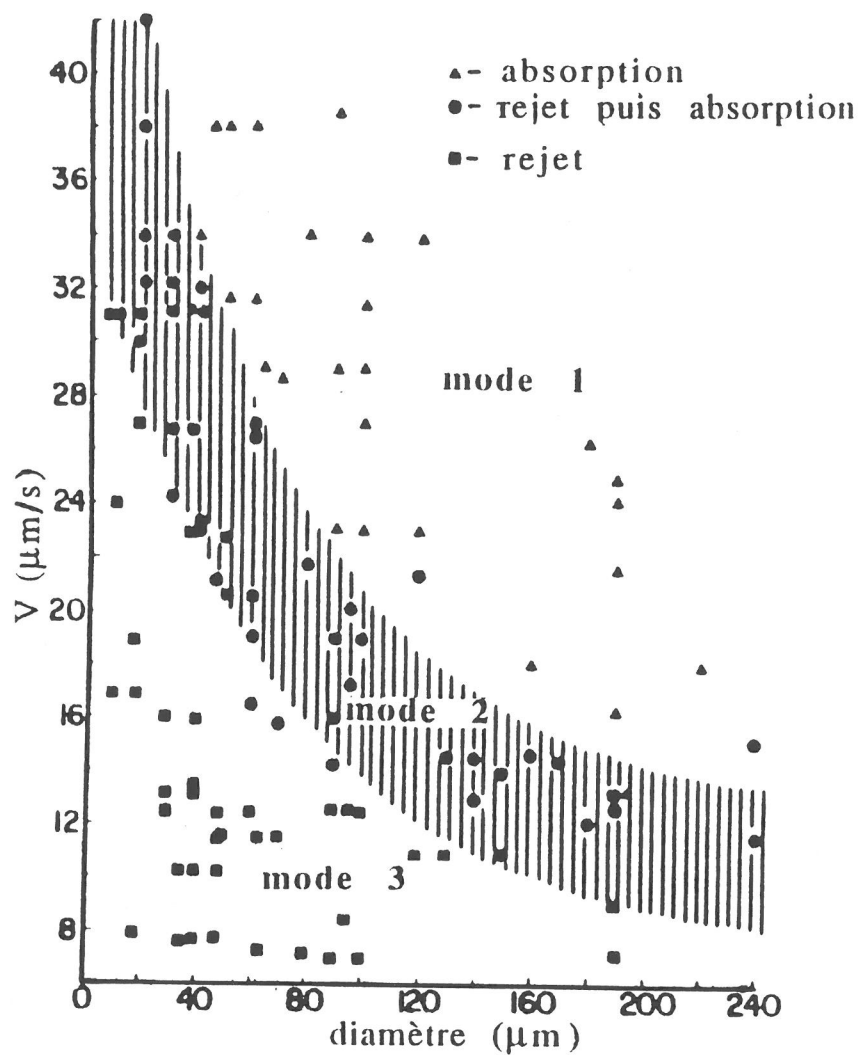
où: C est la capacité calorifique massique en J/K.kg,  $\rho$  la masse volumique en kg/m<sup>3</sup>,  $\rho.C$  la capacité calorifique volumique en J/K.m<sup>3</sup>. Les indices P et L représentent respectivement la particule et la matrice liquide.

Les prédictions obtenues à l'aide de ce critère applicable uniquement à faible vitesse de croissance ( $V_y < \lambda_L / k.r_P$ ). peuvent aussi être confrontées aux résultats mis en évidence par Omenyi et Neumann.

L'examen du tableau I.3 montre clairement que les résultats obtenus sur les divers systèmes étudiés sont en parfait accord avec les prédictions déduites du critère d'effusivité thermique proposé par Rohatgi. Ce modèle, dont les constantes physiques sont assez facilement accessibles permet donc de prédire de façon satisfaisante l'absorption ou le rejet de particules au cours d'une expérience de solidification dirigée en *front plan*, à faible vitesse de croissance et dans le cas de systèmes à matrice organique.

système matrice/particule	$\sigma_{PS} - \sigma_{PL}$ *1 E-03 (J/m <sup>2</sup> )	prédictions basées sur le modèle thermodynamique	$\frac{\sqrt{\lambda_P \cdot C_P \cdot \rho_P}}{\sqrt{\lambda_L \cdot C_L \cdot \rho_L}}$	prédictions basées sur le critère d'effusivité thermique	résultats expérimentaux
Byphényl/téflon	- 2.6	absorption	1.53	absorption	absorption
Byphényl/polystyrène	- 0.1	absorption	1.01	absorption	absorption
Byphényl/nylon	+ 2.5	rejet	0.19	rejet	rejet
Naphtalène/téflon	- 2.7	absorption	1.53	absorption	absorption
Naphtalène/polystyrène	- 0.4	absorption	1.05	absorption	absorption
Naphtalène/nylon	+ 2.1	rejet	0.2	rejet	rejet

**Tableau I.3:** Prédictions du critère d'effusivité thermique et résultats expérimentaux sur quelques systèmes matrice/particule d'après [1],[6].



**Figure I.3:** Vitesse d'absorption ou de rejet en fonction du diamètre des particules concernant le système naphtalène/nylon d'après [11].



A ce stade du raisonnement, on peut légitimement se poser la question suivante :

- un phénomène de rejet ayant été mis en évidence sur les systèmes naphthalène/nylon et byphényl/nylon aux faibles vitesses de croissance, quelles solutions peuvent être envisagées pour inverser cette tendance?

Omenyi et Neumann proposent alors de varier la vitesse de solidification en s'appuyant sur les systèmes précédemment étudiés naphthalène/nylon et byphényl/nylon. Leurs observations mettent en évidence trois modes de comportement des particules de nylon à l'égard du front de solidification :

mode 1: pour des vitesses de croissance élevées, les particules en contact avec le front de solidification sont instantanément absorbées.

mode 2: à vitesse intermédiaire, les particules sont tout d'abord repoussées puis soudainement absorbées.

mode 3: à faible vitesse, un phénomène de rejet se développe tout le long de l'échantillon en accord avec les précédentes observations.

Les trois modes de comportement apparaissent clairement sur la figure I.3 représentant la vitesse d'absorption ou de rejet en fonction du diamètre des particules (système naphthalène/nylon). La partie hachurée du graphique représente la zone de transition entre l'absorption et le rejet (mode 2) en dessus de laquelle se situe la zone d'absorption (mode 1) et en dessous de laquelle apparait le rejet (mode 3). Ces résultats conduisent aux remarques suivantes:

- l'absorption de particules de diamètre  $d_p$  par une interface solide/liquide débute pour une vitesse de solidification d'autant plus faible que  $d_p$  est grand;
- la vitesse de transition est d'autant mieux définie que  $d_p$  est élevé ce qui témoigne d'une plus grande sensibilité des particules de gros diamètre à l'égard d'une variation de vitesse.

### 1.1.3 - Critère empirique de vitesse critique:

A la suite de ces observations, Omenyi et Neumann proposent une relation empirique basée sur le concept de vitesse critique d'absorption. On considère alors qu'il existe une vitesse limite appelée vitesse critique  $V_c$  au delà de laquelle la particule est absorbée par l'interface solide/liquide et en dessous de laquelle elle est rejetée. Une première analyse des variations du mode 2 en fonction du diamètre des particules conduit alors à proposer la relation suivante :

Système matrice/particule	Courbe 1-2		Courbe 2-3	
	a	C	a	C
Naphtalène/nylon	0.48	120	0.46	174

**Tableau I.4:** Valeurs des constantes a et C concernant le système naphtalène/nylon d'après [1].

$$V_C = \frac{C}{d_p^a}$$

où  $C$  et  $a$  sont des constantes empiriques dépendant, entre autres, des forces de viscosité et de la nature du système étudié.

Les frontières délimitant le mode 1 du mode 2 (courbe1-2) et le mode 2 du mode 3 (courbe2-3) ont fait l'objet d'un paramétrage en puissance conduisant aux valeurs de  $a$  et  $C$  pour le système naphtalène/nylon. Les résultats obtenus sont reportés dans le tableau I.4.

Cette approche empirique, utilisable quelle que soit la vitesse de solidification, possède donc un domaine d'application beaucoup plus étendu que les modèles thermodynamiques ou thermiques valables uniquement à faible vitesse de croissance. En revanche, son utilisation se révèle très limitée puisqu'elle ne permet pas de prévoir le comportement d'un système dont les constantes  $a$  et  $C$  sont inconnues.

#### 1.1.4 - Modèle d'Uhlmann, Chalmers et Jackson (UCJ):

Pour pallier l'inefficacité de la relation précédente (I.4), une nouvelle modélisation du phénomène d'absorption ou de rejet de particules par un front de solidification a été proposée par Uhlmann, Chalmers et Jackson [5]. Ces auteurs considèrent que le phénomène de rejet est lié aux deux aspects suivants :

- (1)- l'existence d'une force empêchant toute incorporation de la particule dans le solide (en raison d'écarts d'énergies interfaciales par exemple. A titre indicatif, des mesures électriques préliminaires ont montré qu'aucune interaction électrostatique n'est à l'origine du phénomène de rejet);
- (2)- l'alimentation en métal liquide dans la zone située entre le front solide et la particule.

Le développement du modèle proposé concerne l'interaction d'une particule unique avec une interface solide/liquide plane. En effet, les observations expérimentales ont montré que le comportement des particules était quasi indépendant de leur fraction volumique au voisinage de l'interface S/L, sauf dans le cas où elles sont repoussées et forment alors des amas susceptibles d'engendrer un effort non négligeable sur le front de solidification.

Partant (i) des équations de conservation de la masse, supposant (ii) que l'énergie de surface varie en fonction de la distance  $d$  entre la particule et le front de solidification suivant la relation:

grandeurs physiques	signification des grandeurs physiques	valeurs des grandeurs physiques pour l'eau
L	chaleur latente de solidification	$3.4 \cdot 10^8 \text{ J/m}^3$
$a_0$	distance interatomique	$3 \cdot 10^{-10} \text{ m}$
D	coefficient de diffusion de l'eau à l'état liquide dans la région située entre la particule et le front de solidification	$10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$
$V_0$	volume atomique	$3 \cdot 10^{-29} \text{ m}^3/\text{atome}$
k	constante de Boltzman	$1.38 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$
T	température	273 K
n	nombre entier fonction du système étudié	5

**Tableau I.5:** Grandeurs physiques relatives à une matrice d'eau.

système matrice/particule	prédictions de la vitesse critique $V_C$ d'absorption ( $\mu\text{m/s}$ )		$V_C$ expérimentale ( $\mu\text{m/s}$ )
	$r_P = 1\mu\text{m}$	$r_P = 2\mu\text{m}$	
eau/xylène ( $2\mu\text{m} > r_P > 1\mu\text{m}$ )	2.5	0.6	13
eau/graphite ( $r_P = 2\mu\text{m}$ )		0.6	20

**Tableau I.6:** Vitesses critiques théoriques (I.7) et expérimentales concernant les systèmes eau/xylène et eau/graphite d'après [5].

$$\Delta\sigma = \Delta\sigma_0 \cdot \left\{ \frac{d_0}{d} \right\}^n \quad (I.5)$$

avec  $\Delta\sigma_0 = \sigma_{SP} - (\sigma_{SL} + \sigma_{LP})$  (I.6)

où  $\sigma_{SL}$  est l'énergie interfaciale solide/liquide,  $d_0$  la séparation minimale théorique entre la particule et le front de solidification, et  $n$ , un nombre entier caractéristique du système et (iii) considérant que l'interaction particule/front s'accompagne d'une courbure de l'interface, Uhlmann définit une vitesse critique d'absorption au-dessous de laquelle la particule est rejetée et au dessus de laquelle elle est absorbée.

$$V_C = \frac{(n + 1) \cdot L \cdot a_0 \cdot V_0 \cdot D}{2 \cdot k \cdot T \cdot r_p^2} \quad (I.7)$$

où les diverses grandeurs physiques sont explicitées dans le tableau I.5.

La relation (I.7) confirme et complète donc la relation empirique (I.4) développée précédemment. En effet, on retrouve une loi de la forme  $V_C = C / r_p^n$  dans laquelle d'une part,  $C$  est une constante fonction de quelques caractéristiques de la matrice, d'autre part,  $r_p$  est la seule grandeur physique caractéristique de la particule. La validation expérimentale a été réalisée sur des systèmes comportant soit des particules solides de graphite, soit des particules liquides de xylène dans une matrice d'eau. Les prédictions concernant ces deux systèmes sont comparées aux résultats expérimentaux dans le tableau I.6.

L'analyse des résultats expérimentaux montre clairement l'incapacité du modèle à prédire les conditions de vitesse de croissance permettant l'absorption de particules par le front de solidification. Face à cette observation, Uhlmann propose d'améliorer le modèle en tenant compte des forces de viscosité qui s'exercent sur la particule et sont dirigées vers le front de solidification.

#### 1.1.4.1 - Prise en compte des efforts de viscosité:

Les efforts de viscosité appliqués sur une particule sphérique de rayon  $r_p$  se déplaçant à une vitesse  $V$  au sein d'un fluide de viscosité  $\eta$  sont donnés par la loi de Stokes [9]:

$$\overline{F} = 6 \cdot \pi \cdot \eta \cdot r_p \cdot V \quad (I.8)$$

Si l'on considère une particule située à une distance moyenne  $d_s$  du front de solidification, l'expression des efforts de viscosité qui s'appliquent sur la particule devient:

système matrice/particule	prédictions de la vitesse critique $V_C$ d'absorption ( $\mu\text{m/s}$ )		$V_C$ expérimentale ( $\mu\text{m/s}$ )
	$r_p = 1\mu\text{m}$	$r_p = 2\mu\text{m}$	
eau/xylène ( $2\mu\text{m} > r_p > 1\mu\text{m}$ )	2.1	0.5	13
eau/graphite ( $r_p = 2\mu\text{m}$ )		0.5	20

**Tableau I.7:** Vitesses critiques théoriques (I.10) et expérimentales concernant les systèmes eau/xylène et eau/graphite d'après [5].

$$\bar{F} = \frac{6 \cdot \pi \cdot \eta \cdot r_p^2 \cdot V}{d_s} \quad (I.9)$$

Cette relation intervient comme un effort supplémentaire à inclure dans la démarche proposée par Uhlmann. Un nouveau critère basé sur la vitesse critique de solidification est alors proposé:

$$V_C = \frac{d_s \cdot L \cdot a_0 \cdot d_1}{6 \cdot \eta \cdot r_p^2 \cdot n} \cdot \left\{ -1 + \sqrt{1 + \frac{6 \cdot \eta \cdot n \cdot (n+1) \cdot V_0 \cdot D}{d_s \cdot d_1 \cdot k \cdot T}} \right\} \quad (I.10)$$

où:  $d_1$  est la distance minimum entre le front de solidification et la particule estimée par les auteurs à  $10^{-7}$  cm.

$d_s$ : la distance moyenne particule/interface ( $5 \cdot 10^{-7}$  cm soit 10 distances interatomiques).

$\eta$ : la viscosité dynamique ( $\eta_{\text{eau}}^{25^\circ\text{C}} = 1.8 \cdot 10^{-2}$  P).

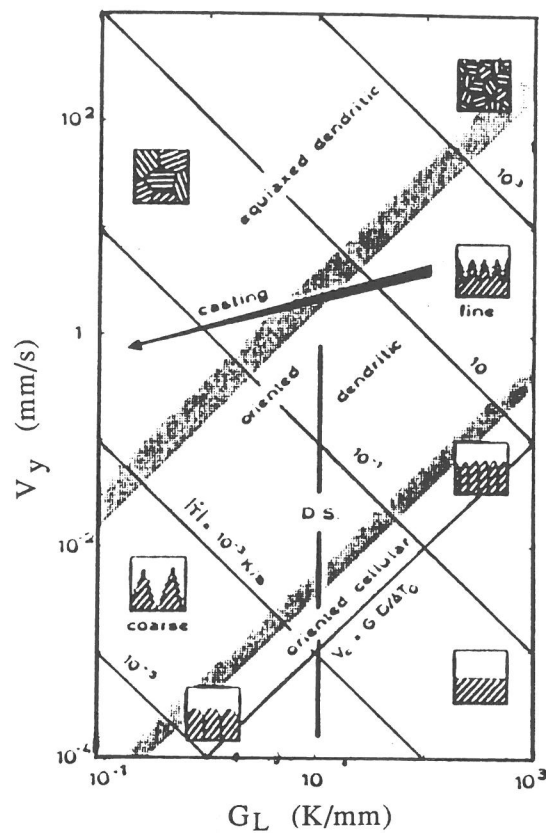
Les prédictions de la relation I.10 concernant les deux systèmes précédemment étudiés sont exposées dans le tableau I.7.

La comparaison des prédictions et des résultats expérimentaux à partir des tableaux I.6 et I.7 montre que les efforts associés à l'écoulement visqueux du fluide autour des particules de faible diamètre jouent un rôle minoritaire ( $F \propto r_p^2$ ). En effet, les prédictions obtenues à partir du modèle prenant en compte le mécanisme de diffusion du fluide dans la zone de contact particule/front et l'écoulement visqueux du liquide autour des particules (Tableau I.7) sont sensiblement identiques à celles formulées à partir du modèle de diffusion (Tableau I.6).

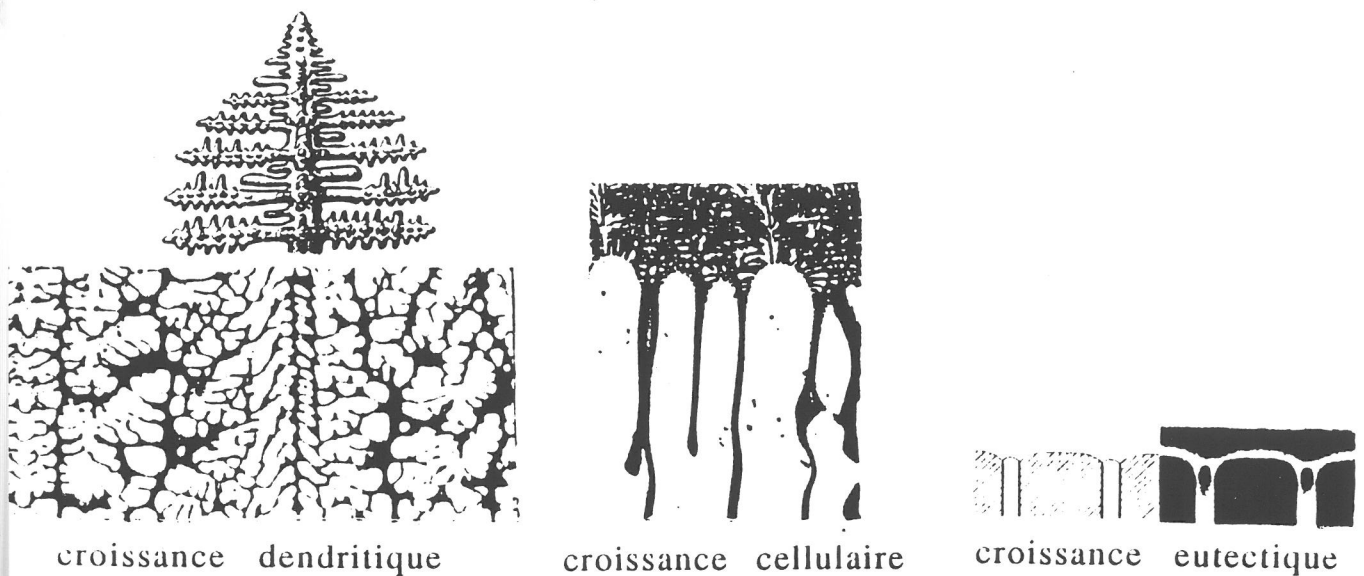
D'autre part, outre son incapacité à définir de façon correcte une vitesse critique d'absorption pour un système donné, ce modèle ne prend en compte que la taille de la particule et néglige l'influence des transferts thermiques à l'interface puisque les conductivités thermiques du liquide, du solide et de la particule sont supposées égales.

De plus, l'expression  $\Delta\sigma = \Delta\sigma_0 \cdot (d_0 / d)^n$  liant l'énergie de surface, la distance  $d$  entre la particule et le front de solidification et la constante  $n$  supposée égale à 5, représente une hypothèse de comportement non vérifiée.

Enfin, les incertitudes associées à la valeur de certaines constantes telles que  $n$ ,  $D$ ,  $d_0$ ,  $d_s$  ou  $d_1$  compliquent considérablement l'utilisation du modèle qui s'avère donc difficilement transposable à tout cas concret.



**Figure I.4:** Synthèse schématique des morphologies de croissance en fonction du gradient thermique  $G_L$  dans le liquide au niveau du front de solidification et de la vitesse  $V_y$  de l'interface S/L d'après [11].



**Figure I.5:** Morphologies d'interfaces solide/liquide susceptibles de se développer au cours d'une expérience de solidification dirigée d'après [11].



## 1.2 - INTERACTION DE PARTICULES AVEC UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GÉOMÉTRIE COMPLEXE:

Cette étude a été envisagée par Stefanescu dans le cas de matériaux composites à matrice d'alliage d'aluminium (MCMA) [12],[13],[14],[15] . De tels alliages se caractérisent par un mode de solidification complexe qui dépend en particulier (i) de la teneur en éléments d'alliage, (ii) de la vitesse  $V_y$  de l'interface solide/liquide et (iii) des gradients thermiques  $G_L$  et  $G_S$  dans le liquide et le solide au niveau du front de solidification.

La teneur en éléments d'alliage joue un rôle primordial dans les mécanismes de solidification dirigée puisque :

- à teneur nulle, la solidification progresse par une interface solide/liquide plane;
- lorsque la teneur augmente, une déstabilisation du front donne naissance à une interface de type cellulaire, dendritique ou plane en fonction du rapport  $G_L/V_y$  (Figure I.4 et I.5);
- enfin, si la teneur en éléments d'alliage correspond à un mélange de composition eutectique, une interface déstabilisée de type eutectique se propage au cours de la solidification(Figure I.5).

### 1.2.1 - Bilan des efforts exercés:

S'appuyant sur les travaux d'Uhlmann, Stéfanescu développe un modèle de comportement du système particule/matrice d'alliage léger dans lequel il suppose que la force de répulsion  $F_r$  exercée par l'interface solide/liquide sur la particule équilibre les efforts de viscosité, de gravité et de poussée d'Archimède  $F_e$  s'exerçant sur la particule au voisinage de l'interface solide/liquide.

Stéfanescu considère alors que l'effort de répulsion se caractérise par une variation d'énergie interfaciale du système au cours du déplacement de la particule du liquide vers le solide et l'exprime par la relation suivante :

$$\overline{F} = \pi \cdot r_p \cdot \Delta\sigma \quad (I.11)$$

Cet effort devient actif à une distance  $d_0$  du front de solidification hypothétiquement représentée par une distance interatomique. Lorsque la distance particule/front notée  $x$  augmente, la contribution des phénomènes d'interface décroît selon la loi suivante :

$$\Delta\sigma = \Delta\sigma_0 \cdot \left( \frac{d_0}{x} \right)^n \quad (I.12)$$

où  $n$  dépend de la nature du système étudié et  $\Delta\sigma_0 = \sigma_{SP} - (\sigma_{SL} + \sigma_{LP})$  représente la contribution des énergies interfaciales pour  $x = d_0$ .

Après avoir reporté la relation (I.12) dans la relation (I.11), Stéfanescu intègre la relation (I.11) entre  $d_0$  et  $d_0 + r_p$  avec les conditions aux limites suivantes :

$$\begin{aligned} \text{pour } x = d_0 + r_p, \quad \bar{F} &= 0 \\ \text{pour } x = d_0, \quad \bar{F} &= \bar{F}_r \end{aligned}$$

Supposons que  $d_0 \ll r_p$ , la force de répulsion  $\bar{F}_r$  s'exprime comme suit :

$$\bar{F}_r = -\frac{\pi \cdot r_p \cdot \Delta\sigma_0}{n - 1} \quad (I.13)$$

D'autre part, l'action conjuguée des phénomènes de gravité et de poussée d'Archimède exerce sur la particule un effort s'exprimant par la relation suivante :

$$F_b = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_p^3 \cdot g \cdot (\rho_P - \rho_L) \quad (I.14)$$

où  $\rho_P$  et  $\rho_L$  sont les masses volumiques respectivement des particule et matrice liquide.

La somme des relations (I.14) et (I.8) peut alors être intégrée avec les conditions aux limites suivantes :

$$\begin{aligned} \text{pour } x = d_0 + r_p, \quad \bar{F} &= 0 \\ \text{pour } x = d_0, \quad \bar{F} &= \bar{F}_e \end{aligned}$$

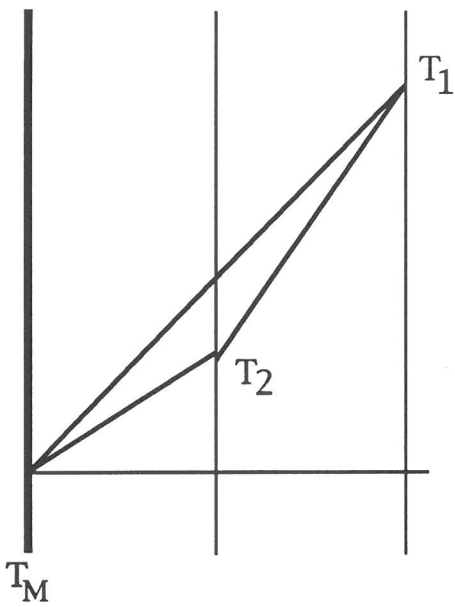
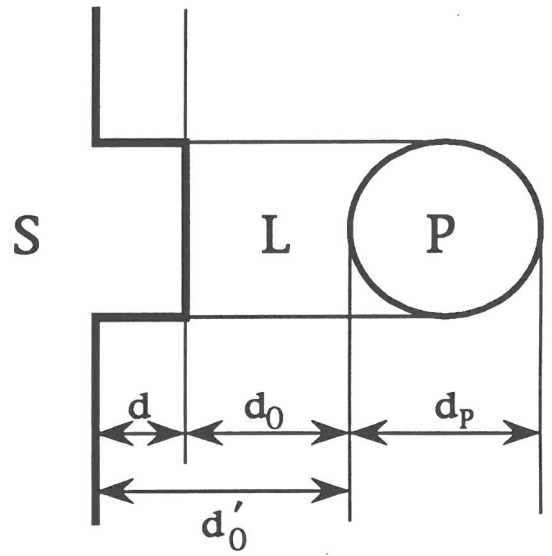
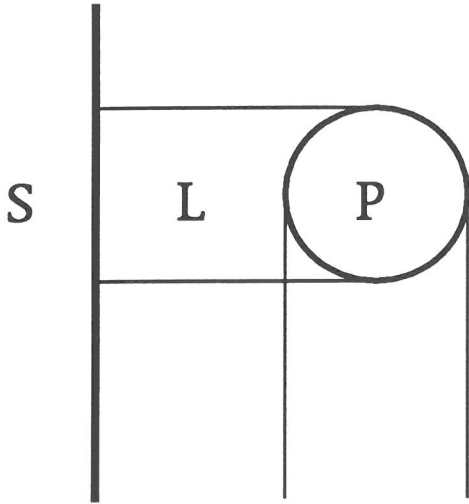
Cette intégration permet d'obtenir l'effort  $\bar{F}_e$  exercé par la particule sur le front de solidification :

$$\bar{F}_e = -\frac{1}{d_0} \cdot \left\{ \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_p^4 \cdot g \cdot (\rho_P - \rho_L) + 6 \cdot \pi \cdot \eta \cdot r_p^2 \cdot V \right\} \quad (I.15)$$

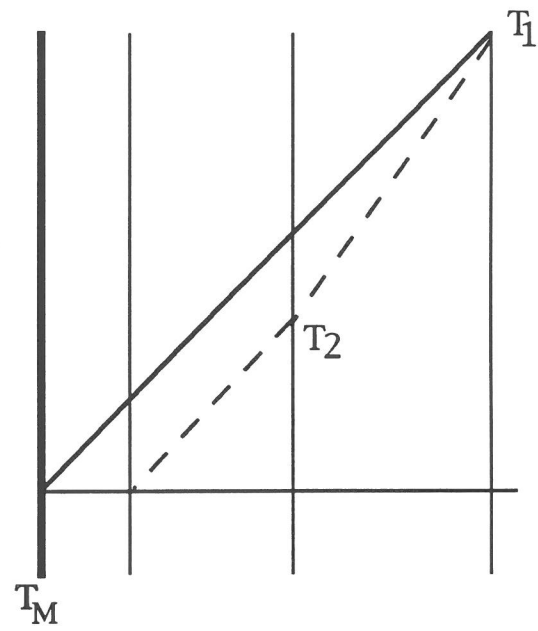
En régime permanent,  $\bar{F}_r$  devient égal à  $\bar{F}_e$  lorsque la vitesse critique  $V_c$  est atteinte. Il en résulte l'expression suivante de la vitesse au delà de laquelle il y a absorption:

$$V_c = \frac{1}{6 \cdot \eta \cdot r_p} \cdot \left\{ \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_p^3 \cdot g \cdot (\rho_P - \rho_L) + \frac{\Delta\sigma_0 \cdot d_0}{n - 1} \right\} \quad (I.16)$$

$$\lambda_P < \lambda_L$$



(a)



(b)

**Figure I.6:** Allure des gradients thermiques au niveau du front de solidification d'après [13].

Cette relation ne prenant cependant pas en compte les transferts de chaleur au sein du système étudié, Stefanescu améliore le modèle en considérant les écarts pouvant exister entre les conductivités thermiques des particule et matrice liquide.

### 1.2.2 - Prise en compte des écarts de conductivité thermique :

Supposons dans un premier temps que la conductivité thermique  $\lambda_p$  de la particule soit inférieure à celle du liquide  $\lambda_L$ . D'après la figure I.6a, le gradient thermique  $G_L$  régnant dans le liquide résulte des conditions d'échanges de chaleur au sein du système en l'absence de particules. Considérons maintenant une particule sphérique de faible conductivité thermique située à une distance  $d_0$  de l'interface solide/liquide et jouant le rôle d'une barrière thermique vis-à-vis des flux de chaleur issus du liquide ( $\lambda_p < \lambda_L$ ). Selon cette configuration, le gradient thermique  $G'_L$  dans le liquide entre la particule et le solide diminue puisque  $T_2$  diminue (Figure I.6a). Pour atteindre un régime permanent, le gradient thermique  $G'_L$  augmente dans le liquide de manière à reprendre sa valeur initiale  $G_L$  entraînant de ce fait l'apparition d'une perturbation convexe au niveau de l'interface solide/liquide (Figure I.6b).

Les expressions des flux de chaleur au sein de la particule  $\Phi_p$  et du liquide  $\Phi_L$  sont données ci-dessous:

$$\begin{aligned}\Phi_p &= \lambda_p \cdot \frac{T_1 - T_2}{2 \cdot r_p} = \lambda_p \cdot \frac{T_M + G_L(d_0 + 2 \cdot r_p) - T_M - G'_L \cdot d_0}{2 \cdot r_p} \\ &= \lambda_p \cdot \frac{G_L \cdot (d_0 + 2 \cdot r_p) - G'_L \cdot d_0}{2 \cdot r_p}\end{aligned}\quad (I.17)$$

$$\Phi_L = \lambda_L \cdot \frac{T_2 - T_M}{d_0} \quad (I.18)$$

L'amplitude  $d$  de la perturbation est obtenue en régime permanent pour  $\Phi_p = \Phi_L$  avec les conditions suivantes:

$$\begin{aligned}(G'_L &= G_L \\ (T_2 - T_M &= G_L \cdot (d_0 - d)\end{aligned}$$

$$d = d_0 \cdot \left(1 - \frac{\lambda_p}{\lambda_L}\right) \quad (I.19)$$

N°	Alliage	Particule	Diamètre des particules (µm)	Fraction volumique (%)	Gradient thermique dans le liquide (°C/cm)	Vitesse du front de solidification (µm/s)	Structure de l'interface	Comportement des particules
1	Al-2%Mg	SiC	50---->150	10	74	8	cellulaire	1
2	"	"	"	"	95	8	"	2
3	"	"	"	"	117	8	cellulaire ou dendritique	3
4	"	"	20 ----> 50	"	117	8	dendritique	3
5	"	"	50---->150	"	95	400	"	1
6	"	"	"	"	117	80	"	2
7	Al-6.1%Ni	SiC	50---->150	5	70	155	eutectique	2
8	"	"	"	"	70	8	"	2
9	"	"	"	"	117	8	"	2
10	Al-17%Cu	SiC	30---->100	10	90	167	dendritique	2
11	Al-2%Mg	Graphite	50---->160	6	74	10	cellulaire	Absorption en fin d'échantillon

**Tableau I.8:** Expériences de solidification dirigée concernant quelques systèmes matrice/particule [12], [13], [14], [15].

- 1: Absorption interdendritique
2: Rejet puis absorption interdendritique lorsque la fraction volumique de particules atteint une fraction volumique critique
3: Rejet

Cette relation prédit donc une perturbation de type convexe ( $d > 0$ ) pour  $\lambda_P < \lambda_L$  et concave ( $d < 0$ ) pour  $\lambda_P > \lambda_L$ . En régime permanent, la distance  $d_0'$  entre la particule et le front de solidification devient égale à :

$$d_0' = d_0 + d = d_0 \cdot \left( 2 - \frac{\lambda_P}{\lambda_L} \right) \tag{I.20}$$

La substitution de la distance initiale particule/front  $d_0$  par  $d_0'$  dans la relation (I.16) conduit à une nouvelle expression de la vitesse critique d'absorption :

$$V_C = \frac{1}{6 \cdot \eta \cdot r_P} \cdot \left\{ \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_P^3 \cdot g \cdot (\rho_P - \rho_L) + \frac{\Delta \sigma_0 \cdot d_0}{n - 1} \cdot \left( 2 - \frac{\lambda_P}{\lambda_L} \right) \right\} \tag{I.21}$$

### 1.2.3 - Influence de la fraction volumique de particules :

La fraction volumique  $V_F$  de particules au niveau du front de solidification pourrait être un paramètre important. Elle est prise en compte par Stéfanesco sous forme d'une modification de la viscosité du mélange liquide/particule (Equation d'Einstein):

$$\eta^* = \eta \cdot \left( 1 + \frac{5 \cdot V_F}{2} \right) \tag{I.22}$$

### 1.2.4 - Confrontation expérimentale et discussion :

Des expériences de solidification dirigées ont été réalisées sur des matériaux composites à matrice d'aluminium dans un four de type Bridgman [12],[13],[14],[15]. Le tableau I.8 regroupe l'ensemble des résultats obtenus sur les divers systèmes étudiés. L'analyse des résultats expérimentaux concernant le système Al - 2 % Mg/SiC conduit aux remarques suivantes:

- la présence de particules au niveau de l'interface solide/liquide se traduit par une perturbation très marquée du front de solidification dont l'origine pourrait être une déstabilisation intense des champs thermiques et solutaux;
- pour des vitesses de solidification égales, la comparaison des résultats relatifs aux échantillons (1), (2), (3) indique que toute diminution du gradient thermique dans le liquide favorise le phénomène d'absorption interdendritique;

système matrice/particule	$\sigma_{PS}(N/m)$	$\lambda_P(W/m.K)$
Al - 2%Mg/SiC	7.81	15.6
Al - 2%Mg/Graphite	-0.007	86.5

**Tableau I.9:** Valeur de l'énergie interfaciale  $\sigma_{PS}$  et de la conductivité thermique  $\lambda_P$  de la particule concernant deux systèmes matrice/particule d'après [14].

- pour des gradients thermiques égaux, la comparaison des échantillons (2) et (5) indique que toute augmentation de la vitesse de solidification facilite le phénomène d'absorption interdendritique;
- par ailleurs, l'influence du diamètre des particules semble faible à l'image des résultats obtenus sur les échantillons (3) et (4).

Concernant le système Al - 2 % Mg/Graphite, un phénomène de rejet a été mis en évidence sur la quasi-totalité de l'échantillon suivi d'une absorption interdendritique en fin de barreau. Cette observation montre l'importance de la nature des particules puisque, dans les mêmes conditions de solidification, les particules de SiC au sein du même alliage sont absorbées dans l'espace interdendritique. La différence de densité entre les deux types de particules pourrait ainsi être à l'origine de cette différence de comportement. En effet, la densité des particules de graphite  $\rho_P = 2 \text{ g/cm}^3$  étant inférieure à celle du liquide considéré  $\rho_L = 2.31 \text{ g/cm}^3$ , ces particules tendent à flotter et se déplacent dans le même sens que le front de solidification. Il en résulte des efforts peu importants à l'interface solide/liquide lorsque le contact s'établit.

A l'opposé, la décantation des particules de SiC de densité  $\rho_P = 3.22 \text{ g/cm}^3$  se déplaçant à l'encontre du front de solidification conduit, lors du contact avec l'interface solide/liquide, à un effort beaucoup plus important et à des conditions plus favorables à un phénomène d'absorption.

L'influence de la conductivité thermique de la particule et de l'énergie interfaciale  $\sigma_{PS}$  semble en outre modérée puisque les valeurs respectives de ces deux grandeurs physiques sont sensées favoriser un phénomène d'absorption dans le cas des particules de graphite par rapport aux particules de SiC ( $\lambda_{SiC} < \lambda_{Graphite}$ ;  $\sigma_{PS\_Graphite} < \sigma_{PS\_SiC}$ )(Tableau I.9).

L'étude du système Al - 6.1 % Ni/SiC nous permet de mettre en évidence l'importance de la géométrie de l'interface. En effet, dans des conditions de solidification identiques, l'échantillon (1) montre que les particules de SiC sont absorbées par l'interface solide/liquide cellulaire de l'alliage Al - 2 % Mg alors que les mêmes particules sont tout d'abord repoussées par le front de solidification eutectique de l'alliage Al - 6.1 % Ni (échantillon 8) puis absorbées quand la fraction volumique de particules augmente. L'interface solide/liquide eutectique dont la géométrie se rapproche des interfaces planes serait donc plus favorable au phénomène de rejet bien que la différence de fraction volumique de particules au sein des deux échantillons de départ n'accorde qu'un crédit limité à cette remarque. Ces conclusions sont néanmoins en accord avec la différence de mode d'absorption se développant au sein des deux systèmes Al - 6.1 % Ni/SiC et Al - 2 % Mg/SiC.

Il apparaît au sein du système Al - 2% Mg/SiC, une absorption interdendritique (mode 1) appelée "entrapment" et caractérisée par un piégeage des particules dans l'espace liquide coexistant entre les branches primaires et secondaires des dendrites ou entre les cellules.

Dans le cas du système Al - 6.1 % Ni/SiC, le piégeage des particules est appelé "engulfment" (mode 2) car il se développe principalement au contact de front plan ou quasi-plan



lors de la progression de l'interface solide/liquide. L'absorption de type 2, sensible au paramètre fraction volumique (échantillon 7, 8 et 9), est cependant beaucoup plus difficile à obtenir puisque l'énergie nécessaire pour que la particule glisse dans le liquide interdendritique et soit absorbée en mode 1 est beaucoup plus faible que l'énergie d'absorption par une phase solide (mode 2) [16].

Enfin, le système Al - 17 % Cu/SiC n'apporte pas d'informations nouvelles puisque le comportement des particules de SiC au sein des alliages Al - 17 % Cu et Al - 2 % Mg est voisin.

Finalement, le modèle de Stefanescu ne permet aucune prédiction quantitative du phénomène d'absorption ou de rejet de particules par une interface solide/liquide déstabilisée. En effet, le développement des relations relatives à ce modèle ne prend pas en compte la géométrie complexe de l'interface solide/liquide et ne correspond donc qu'à un modèle de comportement de particules au voisinage d'un front de solidification plan.

D'autre part, la notion de vitesse critique d'absorption devrait traduire une prédominance du paramètre vitesse de solidification à l'égard du comportement des particules ce qui ne semble pas être vérifié par les résultats expérimentaux.

## CONCLUSION:

Les modèles de comportement proposés dans ce chapitre concernent l'interaction de particules avec un front de solidification plan ( le modèle de Stefanescu, tel qu'il est présenté ici, s'applique également à ce cas ).

L'approche thermodynamique et le critère d'effusivité thermique s'avèrent être des outils de prédiction intéressants sur des systèmes solidifiés à faible vitesse de croissance. Cependant, ces modèles s'appuient uniquement sur les caractéristiques physiques des matériaux et toute prédiction relative à un système donné se caractérise par un comportement unique d'absorption ou de rejet de particules par une interface solide/liquide. Or, conformément aux résultats expérimentaux relatifs aux différentes études, plusieurs paramètres indépendants de la nature du système étudié telles que les conditions de solidification ou la fraction volumique de renfort par exemple, semblent influencer le comportement des particules vis à vis du front de solidification.

Dans cette optique, le modèle de Uhlmann à été développé de façon à prédire le comportement des particules en fonction (i) des caractéristiques physiques des particule et matrice ( diamètre des particules, viscosité de la matrice, ..... ) ainsi que (ii) des grandeurs physiques indépendantes du système étudié telles que la vitesse de solidification ou le gradient thermique à l'interface solide/liquide.

Cette approche étant en désaccord avec les résultats expérimentaux obtenus, il nous a semblé nécessaire dans le cadre de notre étude, de reconsidérer les mécanismes contrôlant l'absorption ou le rejet de fibres céramiques courtes par le front de solidification plan d'un métal (aluminium pur) susceptible d'être la matrice d'un matériau composite.

## REFERENCES:

- 1- S. N. OMENYI, and A.W. NEUMANN, J. Applied. Physics, 1976, vol 47, n° 9, p 3956.
- 2- A. M. ZUBKO, V. G. LOBANOV, and V. V. NIKONOVA, Soviet. Phys. Crystall, 1973, vol 18, p 239.
- 3- P. K. ROHATGI, R. ASTHANA, and S. DAS, International Metals Reviews, 1988, vol 31, n°3, p 115.
- 4- M. K. SURAPPA, and P. K. ROHATGI, J. Mater. Sci. Lett., 1981, vol 16, n°2, p 765.
- 5- D. R. UHLMANN, B. CHALMERS, and K. A. JACKSON, J. Applied. Physics, 1964, vol 35, n° 10, p 2986.
- 6- J. A. CORNIE, J. Mater. Sci. Lett., 1981, vol 16, p 562.
- 7- A. W. NEUMANN, C. J. VAN OSS, and J. SZEKELY, Kolloid-Z.u.Z. Polymere, 1976, vol 251, p 415.
- 8- P. K. ROHATGI, J. Mater. Sci. Lett., 1981, vol 16, p 537.
- 9- G. F. BOLLING, and J. CISSE, J. Crystal. Growth, 1971, vol 10, p 56.
- 10- K. C. RUSSEL, J. A. CORNIE, and S. Y. OH
- 11- W. KURZ, and D.J. FISHER, "Fundamentals of solidification", Trans Tech Publications Ltd, Switzerland, 1986.
- 12- B. K. DHINDAW, A. KACAR, and D. M. STEFANESCU, "Advanced Materials and Processing Techniques for Structural Applications", ASM EUROPE Conf, Paris, 1987, p 491.
- 13- D. M. STEFANESCU, B. K. DHINDAW, A. S. KACAR, and A. MOITRA, Metall. Trans A, 1988, vol 19A, p 2847.
- 14- D. M. STEFANESCU, A. MOITRA, A. S. KACAR, and B. K. DHINDAW, Metall. Trans A, 1990, vol 21A, p 231.
- 15- B. K. DHINDAW, A. MOITRA, D. M. STEFANESCU, and P. CURRERI, Metall. Trans A, 1988, vol 19A, p 1899.
- 16- C. E. SCHVEROV, and F. WEINBERG, Metall. Trans B, 1985, Vol 16B, p 367.
- 17- J.W. Mc COY, and F.E. WAWNER, "Cast Reinforced Metal Composites", S.G. FISHMAN, and A.K. DHINGRA ed, ASM INTERNATIONAL 1988.
- 18- D. SHANGGUAN, S. AHUJA, and D.M. STEFANESCU, Metall. Trans 23A, 1992, 669,680.
- 19- A.R. KENNEDY, and T.W. CLYNE, Cast Metals, 1991, 160,164.

# CHAPITRE II

## MODELISATION

### INTRODUCTION:

2.1 - DESCRIPTION DU PHENOMENE D'ABSORPTION OU DE REJET D'UN RENFORT FIBREUX PAR UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GEOMETRIE PLANE:

2.2 - PRESENTATION DES DIFFERENTS MECANISMES MIS EN JEU LORS DE L'INTERACTION D'UN RENFORT FIBREUX AVEC UNE INTERFACE SOLIDE-LIQUIDE:

2.1.1 - Les échanges thermiques au niveau du front de solidification:

2.2.2 - Variation d'énergies interfaciales:

2.2.3 - Les forces appliquées au niveau du front de solidification:

2.2.4 - Ségrégation d'éléments d'alliages au cours d'une expérience de solidification dirigée:

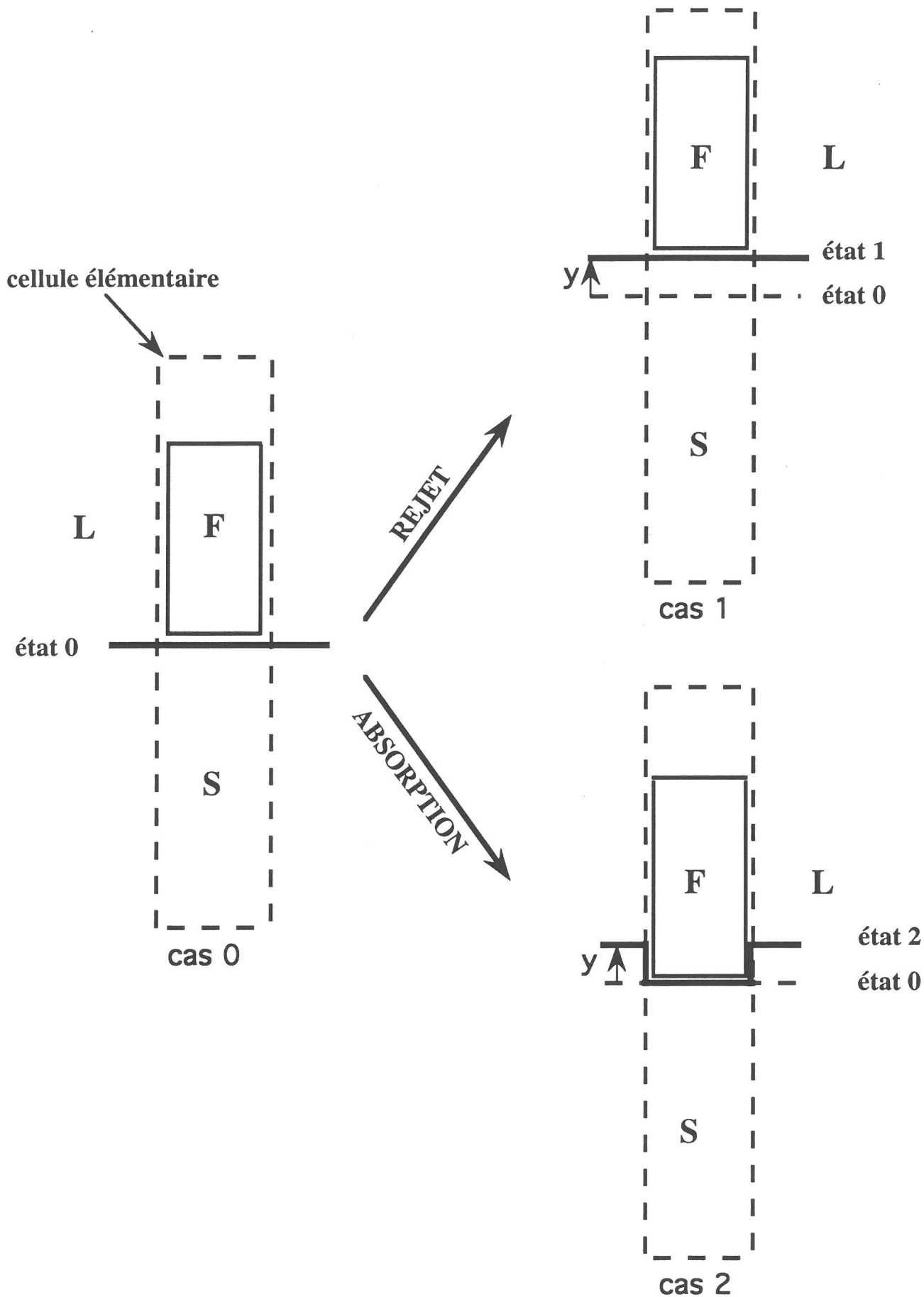
2.3 - DEVELOPPEMENT DU MODELE:

2.3.1 - Détermination des grandeurs  $\Delta G_F^2 = G_F^2 - G_{F1}^2$  et  $\Delta G_S^2 = G_S^2 - G_{S1}^2$

2.3.2 - Expressions de la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G_1^2$  pour chacun des cas étudiés:

2.3.3 - Etude de la fonction  $\Delta G_1^2 = f(y)$  pour le cas où l'axe du renfort fibreux est perpendiculaire à l'interface S/L.

CONCLUSION  
REFERENCES



**Figure II.1:** représentation schématique du comportement d'un renfort fibreux au voisinage d'une interface S/L plane ou quasi-plane.

## INTRODUCTION:

Au cours de ce chapitre, nous nous intéressons au développement du modèle de comportement d'un renfort fibreux au voisinage d'une interface S/L de géométrie plane.

Dans une première partie, nous décrivons les situations associées au phénomène d'absorption ou de rejet et posons les hypothèses concernant le comportement du renfort fibreux au cours de chacun des deux phénomènes.

Dans une seconde partie, nous présentons les divers mécanismes mis en jeu lors de l'interaction d'un renfort fibreux avec une interface solide/liquide plane nous permettant, dans une troisième partie, de développer le modèle de comportement.

### 2.1 - DESCRIPTION DU PHENOMENE D'ABSORPTION OU DE REJET D'UN RENFORT FIBREUX PAR UNE INTERFACE SOLIDE/LIQUIDE DE GEOMETRIE PLANE:

Considérons dans un premier temps, un matériau composite dont la matrice se caractérise par un mode de solidification en front plan ou quasi-plan. En regard de cette interface animée d'un mouvement de translation dans une direction donnée, un renfort fibreux de géométrie cylindrique peut alors être repoussé par le front de solidification (*cas 1*) ou absorbé par ce dernier (*cas 2*). Ces deux situations extrêmes sont représentées, sur la figure II.1, par un schéma de comportement du renfort fibreux dont l'axe est supposé perpendiculaire à une interface solide/liquide (S/L) de géométrie plane.

Initialement, le système front de solidification/renfort fibreux est immobile et représenté par le *cas 0*. Au cours d'une avancée  $y$  de l'interface S/L plane depuis l'état **O** vers l'état **1** durant une période de temps  $t_0$ , le renfort fibreux s'est déplacé d'une même distance témoignant ainsi d'un phénomène de rejet de la fibre par le front de solidification (*cas 1*).

Au cours d'une avancée  $y$  de l'interface S/L depuis l'état **O** vers l'état **2** durant la même période de temps  $t_0$ , le renfort fibreux est resté immobile traduisant ainsi un phénomène d'absorption de la fibre par le front de solidification (*cas 2*).

Les phénomènes d'absorption ou de rejet du renfort fibreux au voisinage du front de solidification seront étudiés à l'intérieur d'une cellule élémentaire immobile durant la période de temps  $t_0$  et située autour de la zone susceptible d'être perturbée au cours d'une avancée  $y$  de l'interface S/L.

Conformément à la figure II.1, nous supposons que :

- en régime stationnaire (*cas 0*), le système étudié comporte une couche de matrice liquide, aussi fine soit-elle, entre le front de solidification et le renfort fibreux [14];
- lorsque l'interface S/L se déplace en repoussant la fibre (*cas 1*), cette fine pellicule de matrice liquide reste présente ;
- le phénomène d'absorption (*cas 2*) s'accompagne d'une perturbation d'amplitude  $y$ . Cette perturbation conduit à un incrément d'interface S/L puisqu'une fine pellicule de liquide sépare le renfort fibreux du front de solidification.

Précisons également que, durant la période de temps  $t_0$ , les phénomènes d'absorption (*cas 2*) ou de rejet (*cas 1*) sont envisagés à probabilité égale, le cas le plus stable énergétiquement étant supposé se développer durant la période de temps considérée.

Enfin, la figure II.1 met en évidence le comportement d'un renfort fibreux positionné perpendiculairement au front de solidification ; cependant, le matériau composite élaboré se caractérise par une orientation aléatoire des fibres courtes dans le volume et par conséquent, au niveau de l'interface S/L. Chaque position du renfort fibreux par rapport au front de solidification ne pouvant être prise en considération, deux situations extrêmes seront étudiées :

- 1°) l'axe de la fibre est perpendiculaire au front de solidification ;
- 2°) l'axe de la fibre est parallèle au front de solidification.

A ce stade de l'étude, il semble primordial d'explicitier les différents phénomènes physiques, chimiques ou mécaniques susceptibles de jouer un rôle dans le processus d'absorption ou de rejet d'un renfort fibreux par une interface S/L.

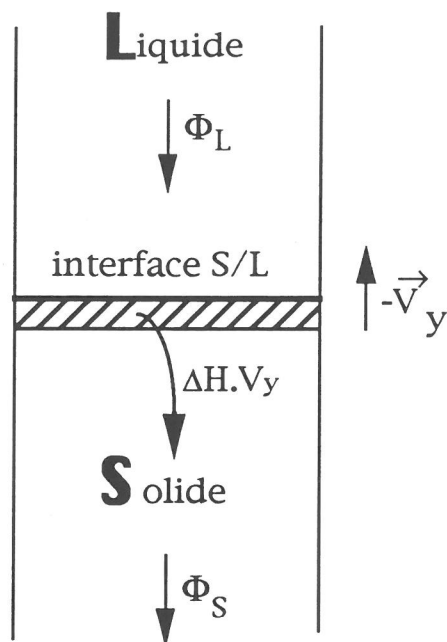
## 2.2 - PRESENTATION DES DIFFERENTS MECANISMES MIS EN JEU LORS DE L'INTERACTION D'UN RENFORT FIBREUX AVEC UNE INTERFACE SOLIDE-LIQUIDE:

### 2.1.1 - Les échanges thermiques au niveau du front de solidification:

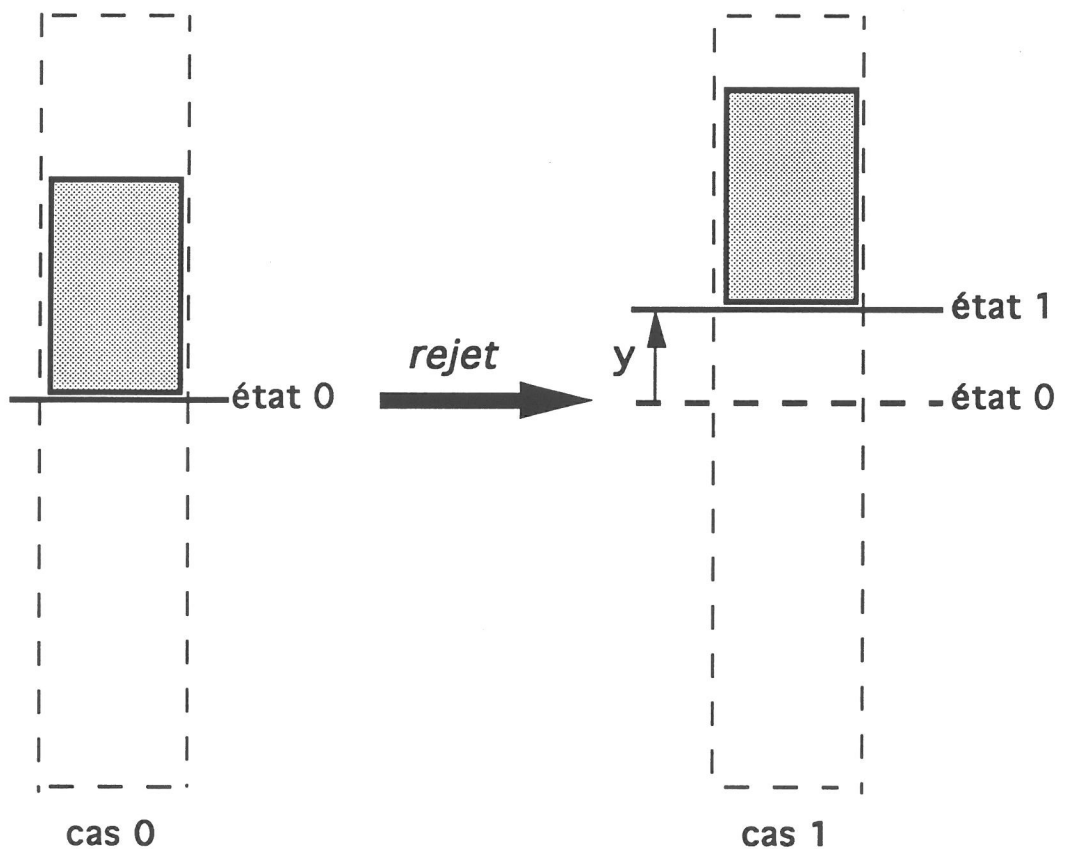
Au sein d'un métal se solidifiant, l'interface S/L dont la température est très voisine de celle du liquidus (faible surfusion cinétique dans le cas des métaux) [1],[2], est le siège de transferts thermiques contrôlés par la loi d'équilibre suivante [5]:

$$\lambda_L \cdot G_L + \Delta H \cdot V_y = \lambda_S \cdot G_S \quad (II.1)$$

où:  $\lambda_S$  et  $\lambda_L$  sont les conductivités thermiques respectivement dans le solide et le liquide (W/m.K)



**Figure II.2:** représentation schématique des transferts thermiques au voisinage d'une interface S/L plane.



**Figure II.3:** Représentation d'un renfort fibreux d'axe perpendiculaire au front de solidification au cours du phénomène de rejet.



$G_S$  et  $G_L$ : les gradients thermiques respectivement dans le solide et le liquide au voisinage de l'interface S/L (K/m);

$V_y$ : la vitesse de solidification (m/s);

$\Delta H$ : la chaleur latente de solidification (J/m<sup>3</sup>).

Cet équilibre se caractérise ainsi que le schématise la figure II.2, par:

- un flux de chaleur  $\Phi_L = \lambda_L \cdot G_L$  en provenance du liquide et acheminé à l'interface S/L par conduction ;
- un flux de chaleur  $\Phi_S = \lambda_S \cdot G_S$  dissipé dans le solide par conduction ;
- un flux de chaleur  $\Delta H \cdot V_y$  résultant de la libération de chaleur latente de solidification à l'interface S/L.

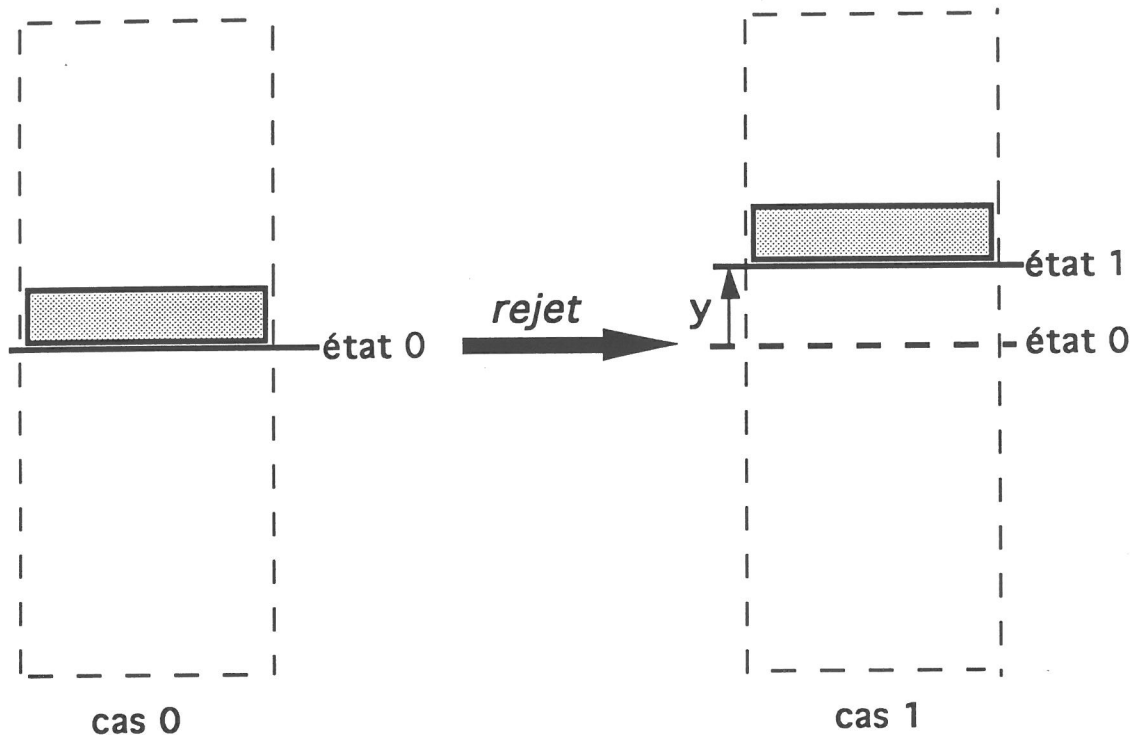
Au sein d'un matériau composite à matrice d'aluminium quasi-pur renforcé par des fibres courtes, les transferts thermiques à l'interface S/L deviennent beaucoup plus complexes puisque le flux de chaleur au niveau du front de solidification résulte, à la fois, d'une contribution du liquide  $\lambda_L \cdot G_L$  et du renfort fibreux présent à l'interface  $\lambda_F \cdot G_F$ . Les caractéristiques physiques de ces deux constituants étant souvent très différentes, les profils thermiques au sein du liquide, du solide et de la fibre deviennent alors difficiles à appréhender en raison de la complexité de la loi d'équilibre régissant ce système. Face à cette difficulté, un bilan des transferts thermiques concernant le phénomène de rejet et d'absorption sera effectué uniquement au sein de la cellule élémentaire en considérant dans un premier temps, que la couche de liquide séparant le front de solidification du renfort fibreux est si fine qu'elle n'intervient pas dans les transferts de chaleur à l'interface S/L.

#### 2.2.1.1 - Phénomène de rejet:

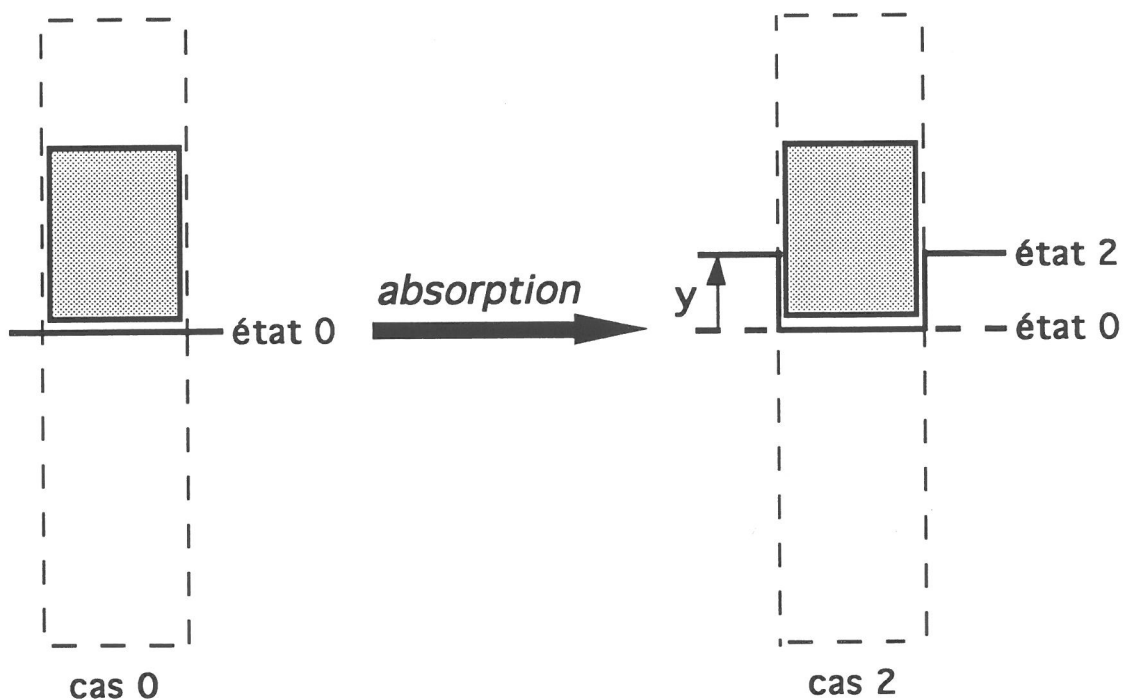
*2.2.1.1.1 - l'axe de la fibre se positionne perpendiculairement au front de solidification (Figure II.3):*

Lorsque le front de solidification est immobile (*cas O*), un champ de température s'établit au sein de la fibre de section  $S_F$ , du liquide et du solide. Ce champ est alors représenté respectivement par les gradients thermiques  $G_{F0}$ ,  $G_{L0}$  et  $G_{S0}$ .

Au cours d'un déplacement  $y$  de l'interface S/L depuis l'état **O** vers l'état **1** durant une période de temps  $t_0$ , une quantité  $y \cdot S_F$  de liquide va se solidifier à l'intérieur de la cellule élémentaire, repoussant le renfort fibreux et libérant une énergie  $\Delta H \cdot S_F \cdot y$  de solidification (Figure II.3). Cette quantité de chaleur correspondant à la solidification, est alors supposée dissipée par conduction à la fois dans la fibre et le solide formé. Il en résulte un nouveau profil thermique au voisinage de l'interface S/L représenté par les gradients thermiques  $G_{S1}$  et  $G_{F1}$ . Durant la période de temps  $t_0$ , une énergie thermique  $\lambda_F \cdot S_F \cdot G_{F1} \cdot t_0$  est ainsi acheminée au



**Figure II.4:** Représentation d'un renfort fibreux d'axe parallèle au front de solidification au cours du phénomène de rejet.



**Figure II.5:** Représentation d'un renfort fibreux d'axe perpendiculaire au front de solidification au cours du phénomène d'absorption.

niveau du front de solidification, tandis qu'une énergie thermique  $\lambda_S \cdot S_F \cdot G_{S1} \cdot t_0$  est transférée par le solide.

La variation d'énergie de Gibbs, associée à une modification des transferts thermiques depuis l'état O vers l'état 1, s'exprime donc par la relation suivante :

$$\Delta G_{0 \rightarrow 1}^{th(\perp)} = -\Delta H \cdot S_F \cdot y - \lambda_F \cdot S_F \cdot G_{F1} \cdot t_0 + \lambda_S \cdot S_F \cdot G_{S1} \cdot t_0 \quad (II.2)$$

La libération de chaleur latente à l'interface S/L résulte de la solidification d'une parcelle de liquide conduisant à une diminution de l'énergie de Gibbs du système étudié [7].

#### 2.2.1.1.2 - l'axe de la fibre se positionne parallèlement au front de solidification (Figure II.4):

Les phénomènes physiques présentés dans le paragraphe précédent(2.2.1.1.1) restent inchangés. En revanche, la propagation de chaleur se développe maintenant perpendiculairement à l'axe de la fibre (Figure II.4). La surface caractéristique du transfert thermique n'est donc plus la section  $S_F$  du renfort fibreux mais le produit  $2 \cdot L_F \cdot r_F$  où  $L_F$  et  $r_F$  représentent respectivement la longueur et le rayon de la fibre.

La variation d'énergie de Gibbs, associée à une modification des transferts thermiques à l'interface S/L depuis l'état O vers l'état 1, s'exprime donc par la relation suivante :

$$\Delta G_{0 \rightarrow 1}^{th(//)} = -2 \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot y - 2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{F1} \cdot t_0 + 2 \cdot \lambda_S \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{S1} \cdot t_0 \quad (II.3)$$

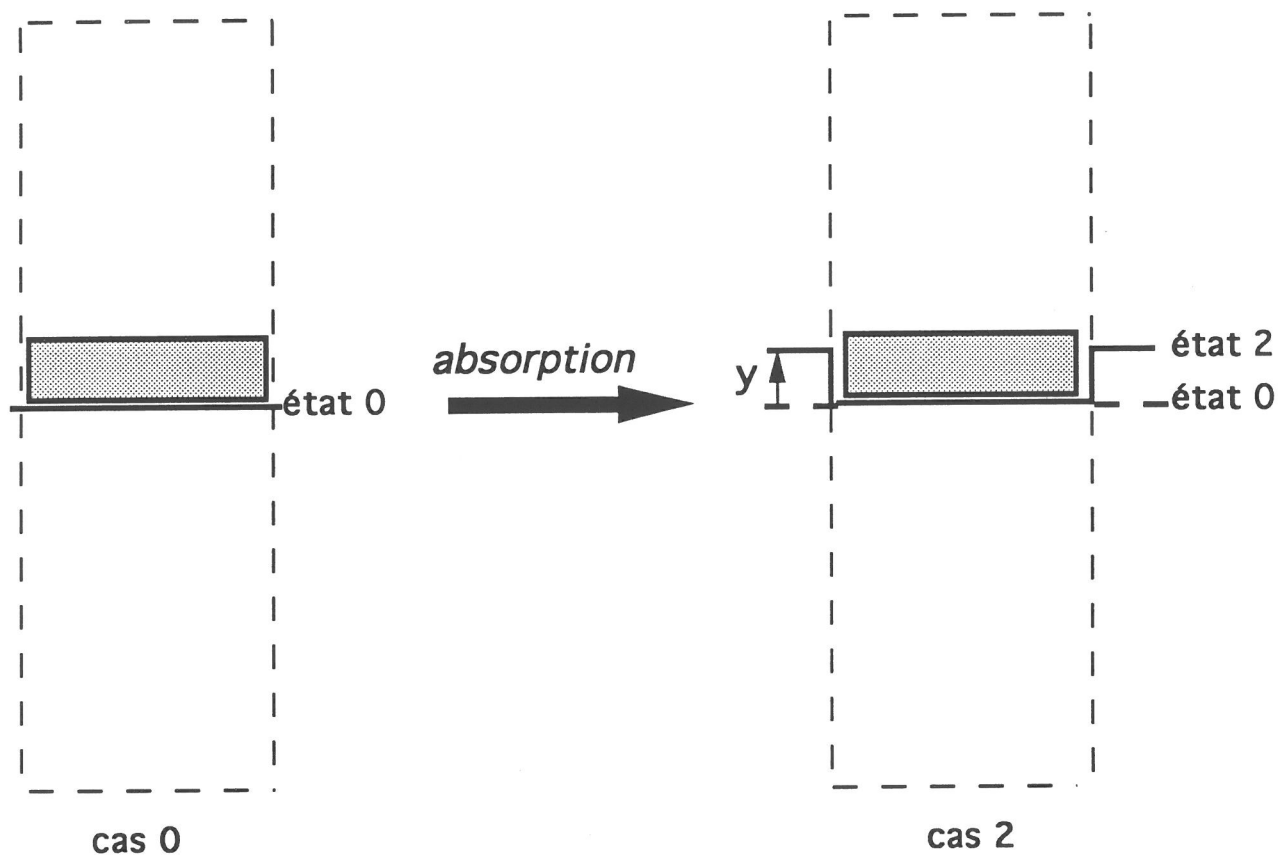
#### 2.2.1.2 - Phénomène d'absorption:

##### 2.2.1.2.1 - l'axe de la fibre se positionne perpendiculairement au front de solidification (Figure II.5):

Au cours d'un déplacement  $y$  de l'interface S/L depuis l'état O vers l'état 2, durant une période de temps  $t_0$ , le renfort fibreux est resté immobile (Figure II.5). Un nouveau profil de température représenté par les gradients thermiques  $G_{F2}$  et  $G_{S2}$ , respectivement dans le renfort fibreux et dans le solide, s'établit donc au sein de la cellule élémentaire sachant que, dans ce cas, il n'y a pas rejet de chaleur latente de solidification au niveau de l'interface S/L.

La variation d'énergie de Gibbs associée à une modification des transferts thermiques à l'interface S/L depuis l'état O vers l'état 2 s'exprime donc par la relation suivante :

$$\Delta G_{0 \rightarrow 2}^{th(\perp)} = -\lambda_F \cdot S_F \cdot G_{F2} \cdot t_0 + \lambda_S \cdot S_F \cdot G_{S2} \cdot t_0 \quad (II.4)$$



**Figure II.6:** Représentation d'un renfort fibreux d'axe parallèle au front de solidification au cours du phénomène d'absorption.

2.2.1.2.2 - *l'axe de la fibre se positionne parallèlement au front de solidification (Figure II.6):*

La variation d'énergie de Gibbs associée à une modification des transferts thermiques à l'interface S/L depuis l'état O vers l'état 2 s'exprime par la relation suivante (Figure II.6):

$$\Delta G_{0 \rightarrow 2}^{th} = -2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{F2} \cdot t_0 + 2 \cdot \lambda_S \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{S2} \cdot t_0 \quad (II.5)$$

2.2.2 - Variation d'énergies interfaciales:

Considérons de nouveau les trois cas définis à la figure II.1: Au niveau de la cellule élémentaire coexistent diverses interfaces représentées, pour chacune d'elles, par une énergie interfaciale telle que :

- l'énergie de surface aluminium solide/Al liquide  $\sigma_{SL}$ ;
- l'énergie de surface fibre/Al liquide  $\sigma_{FL}$ .

2.2.2.1 - Phénomène de rejet:

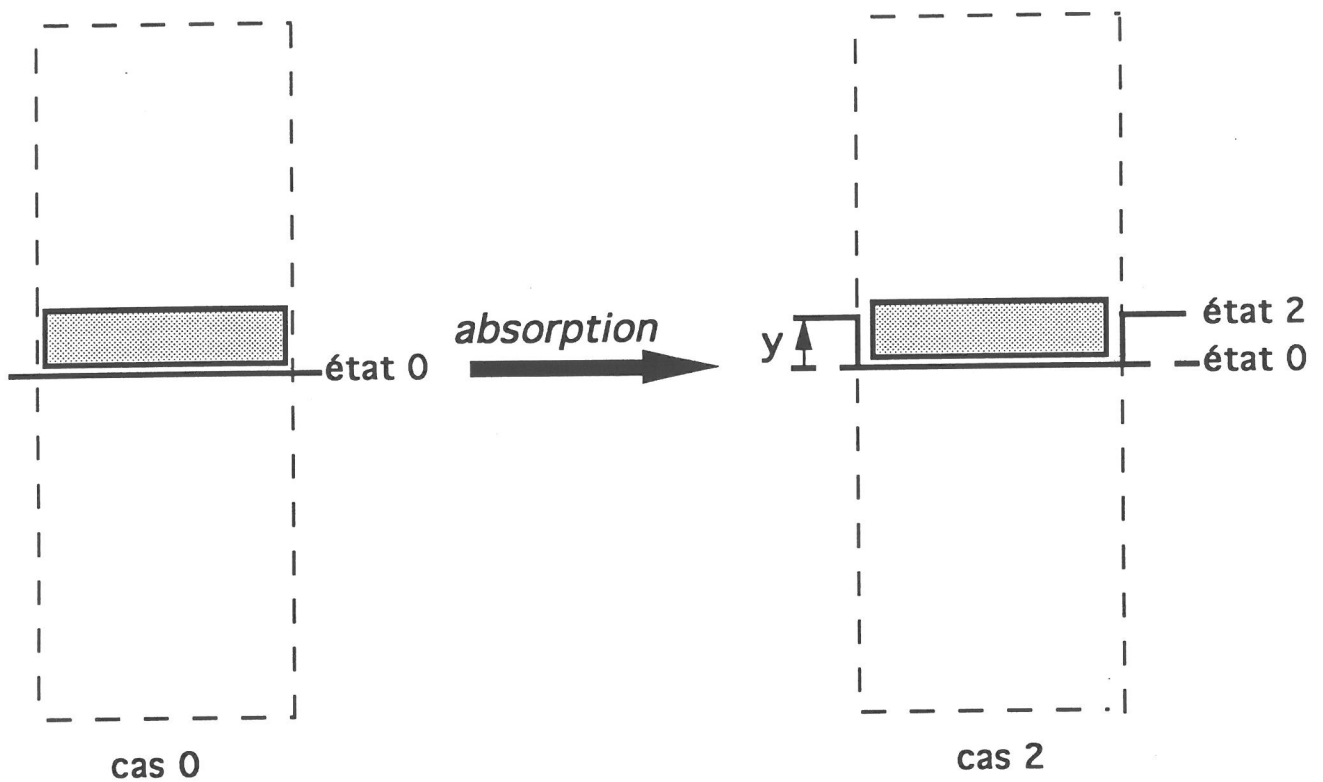
Au cours du phénomène de rejet, la variation d'énergie de Gibbs associée à une variation d'énergie de surface depuis l'état O vers l'état 1 est nulle ( $\Delta G_{0 \rightarrow 1}^{surface} = 0$ ), quelle que soit la position du renfort fibreux par rapport à l'interface S/L. En effet, lors d'un déplacement  $y$  du front de solidification, aucune création, ni disparition de surface, n'est à noter au sein de la cellule élémentaire (Figure II.3).

2.2.2.2 - Phénomène d'absorption:

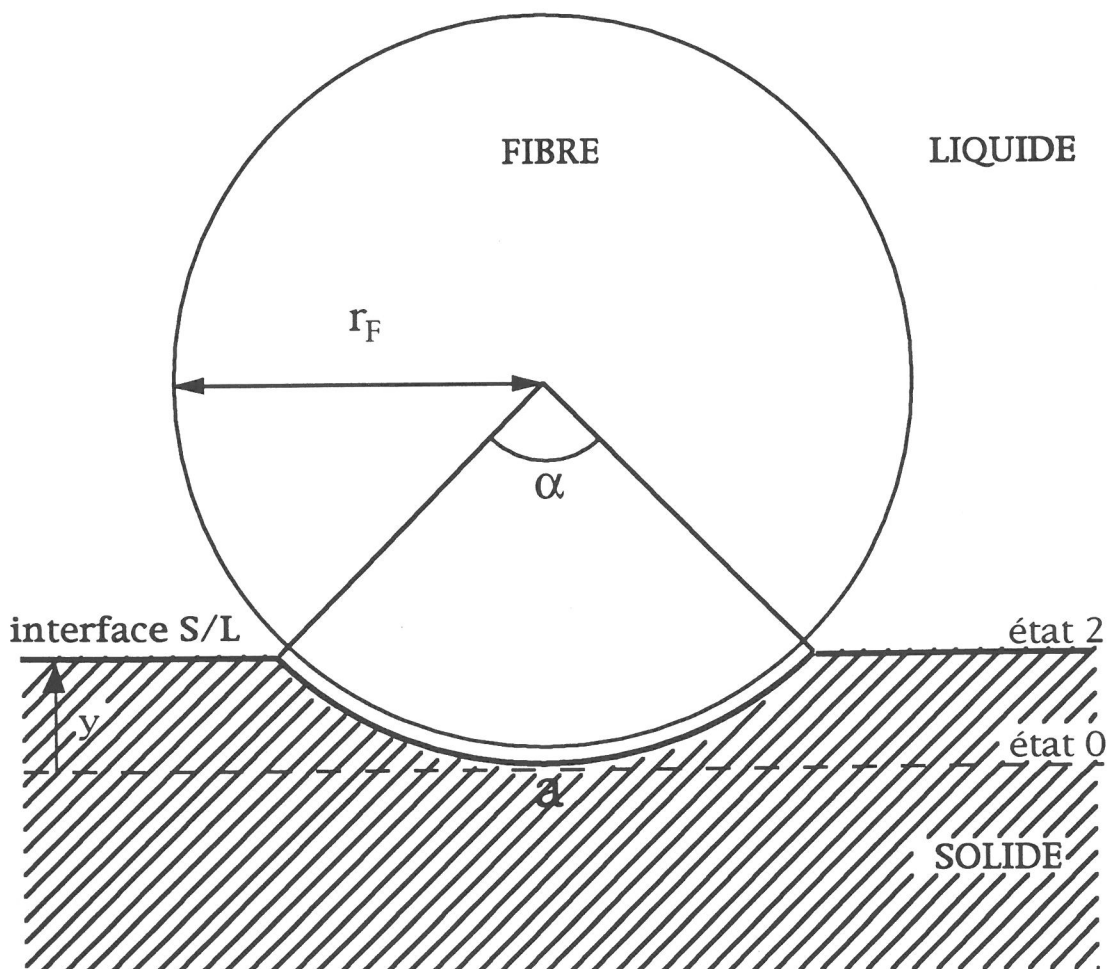
Le phénomène d'absorption conduit à une perturbation d'amplitude  $y$  entre le front de solidification et le renfort fibreux. Cette perturbation de l'interface S/L se traduit donc par un incrément de surface solide/liquide puisqu'une fine pellicule de liquide sépare le front de solidification du renfort fibreux.

2.2.2.2.1 - *l'axe de la fibre se positionne perpendiculairement au front de solidification (Figure II.5):*

On suppose que l'épaisseur  $e_l$  de la pellicule de liquide existant entre l'interface S/L et le renfort fibreux est faible devant le rayon  $r_F$  de la fibre de sorte que  $r_F + e_l \approx r_F$ . Au cours du phénomène d'absorption, la variation d'énergie de Gibbs associée à une variation d'énergie de surface depuis l'état O vers l'état 2 s'exprime comme suit (Figure II.5):



**Figure II.7:** Représentation d'un renfort fibreux d'axe parallèle au front de solidification au cours du phénomène d'absorption.



**Figure II.8:** Représentation du renfort fibreux absorbé par le front de solidification.

$$\Delta G_{0\text{-surface}}^2(\perp) = \{2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot y\} \cdot \sigma_{SL} \quad (\text{II.6})$$

2.2.2.2.2 - l'axe de la fibre se positionne parallèlement au front de solidification (Figure II.7):

Par l'intermédiaire de la figure II.8, exprimons la variation  $\Delta S_0^2$  d'interface S/L entre l'état 0 et l'état 2 en supposant que  $r_F + e_l \approx r_F$ :

$$\Delta S_0^2 = \alpha \cdot r_F \cdot L_F + 2 \cdot \left\{ \frac{\alpha \cdot r_F^2}{2} - \left( r_F \cdot \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right) \cdot (r_F - y) \right\} - 2 \cdot r_F \cdot L_F \cdot \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \quad (\text{II.7})$$

Au début du phénomène d'absorption, l'angle  $\alpha$  est petit. On peut donc utiliser le développement limité au 1<sup>er</sup> ordre de  $\sin(\alpha/2)$ . La relation (II.7) s'exprime alors comme suit:

$$\Delta S_0^2 = \alpha \cdot r_F \cdot y \quad (\text{II.8})$$

De façon à déterminer l'angle  $\alpha$ , explicitons tout d'abord l'arc de cercle a:

$$a = r_F \cdot \alpha \quad \text{avec} \quad \cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) = \frac{r_F - y}{r_F} \quad (\text{II.9})$$

Par l'intermédiaire du développement limité au 1<sup>er</sup> ordre de  $\cos(\alpha/2)$ , la relation (II.9) devient:

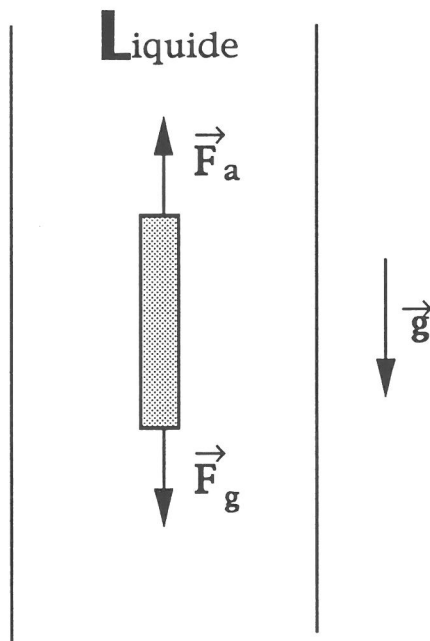
$$\alpha = 2 \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot y}{r_F}} \quad (\text{II.10})$$

Considérant les relations (II.8) et (II.10), la variation  $\Delta S_0^2$  d'interface S/L depuis l'état 0 vers l'état 2 s'exprime alors comme suit:

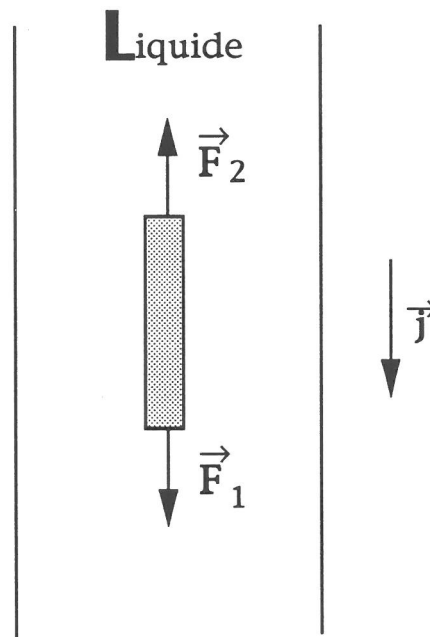
$$\Delta S_0^2 = 2 \cdot \sqrt{2 \cdot r_F \cdot y} \cdot y \quad (\text{II.11})$$

La variation d'énergie de Gibbs associée à une modification d'énergie de surface depuis l'état 0 vers l'état 2 s'exprime donc par la relation suivante :

$$\Delta G_{0\text{-surface}}^2(//) = 2 \cdot \sqrt{2 \cdot r_F \cdot y} \cdot y \cdot \sigma_{SL} \quad (\text{II.12})$$



**Figure II.9:** Représentation schématique des forces de gravité et de poussée d'archimède.



**Figure II.10:** Mise en évidence des efforts  $\vec{F}_1$  et  $\vec{F}_2$  concernant le cas n°1.



### 2.2.3 - Les forces appliquées au niveau du front de solidification:

#### 2.2.3.1 - Principaux efforts: Force de gravité - poussée d'Archimède - force de viscosité:

Le renfort fibreux est soumis au sein du liquide à l'action conjuguée des efforts de gravité  $\vec{F}_G$  et de poussée d'Archimède  $\vec{F}_A$  (Figure II.9):

$$\vec{F}_1 = \vec{F}_G + \vec{F}_A = \pi \cdot r_F^2 \cdot L_F \cdot (\rho_F - \rho_L) \cdot \vec{g} \quad (II.13)$$

où :  $\rho_F$  est la masse volumique du renfort fibreux (kg/m<sup>3</sup>)

$\rho_L$  la masse volumique du liquide (kg/m<sup>3</sup>)

$\vec{g}$  l'accélération de la pesanteur (m/s<sup>2</sup>)

D'autre part, tout déplacement du renfort fibreux engendré par cet effort  $\vec{F}_1$  donne naissance à une force de viscosité  $\vec{F}_2$  ( $\vec{F}_2 = (1/2) \cdot f \cdot S_F \cdot \rho_L \cdot V^2$  [11]) s'opposant partiellement au déplacement de la fibre. Afin de définir l'équilibre des forces au sein du système, deux cas doivent être considérés en fonction du signe du terme  $(\rho_F - \rho_L)$ .

Cas n° 1 : La masse volumique de la fibre est supérieure à celle de la matrice à l'état liquide.

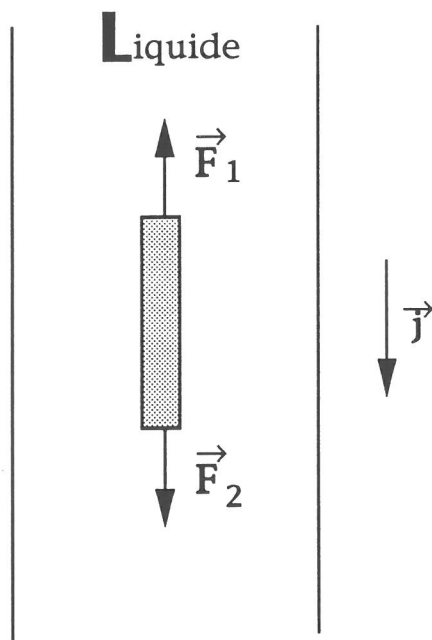
Suivant cette configuration, le renfort fibreux est soumis au sein du liquide à un effort  $\vec{F}_1$  dirigé suivant l'accélération de la pesanteur (Figure II.10). Sous l'action de cette force, le renfort fibreux se déplace au sein du liquide générant un effort de viscosité  $\vec{F}_2$  [11] s'opposant à l'accélération de la pesanteur. En régime permanent, le renfort fibreux sédimente à vitesse constante puisque la somme des forces appliquées au système est nulle. Il en résulte que si  $F_1$  et  $F_2$  sont des valeurs arithmétiques de ces efforts:

$$\begin{aligned} \sum \vec{F} &= \vec{0} \quad \Rightarrow \quad F_1 - F_2 = 0 \\ &\Rightarrow \quad \pi \cdot r_F^2 \cdot L_F \cdot g \cdot (\rho_F - \rho_L) - \frac{1}{2} \cdot f \cdot S_F \cdot \rho_L \cdot V^2 = 0 \end{aligned} \quad (II.14)$$

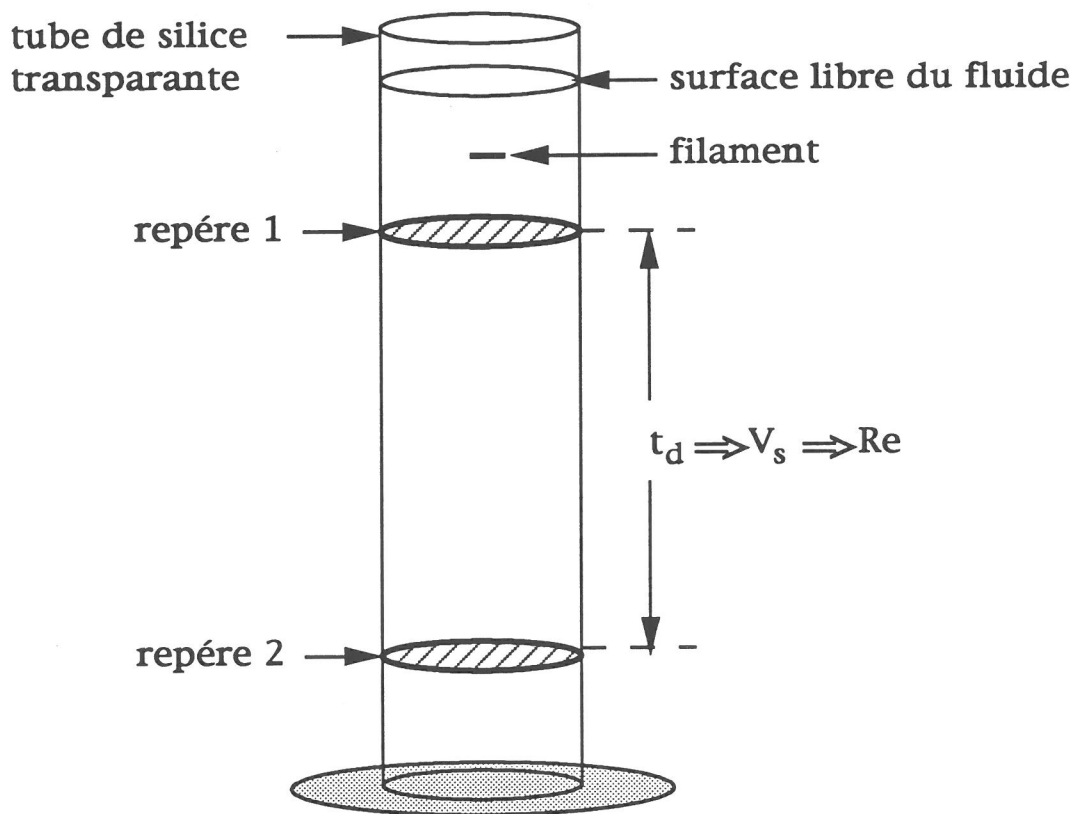
où:  $f$  est le coefficient de frottement entre la fibre et le liquide s'exprimant par la relation  $f = \alpha / Re$  [11]

où:  $\alpha$  est le paramètre de forme du renfort  
 $Re$ : le nombre de Reynolds défini par [11]:

$$Re = \frac{2 \cdot r_F \cdot V \cdot \rho_L}{\mu_L} \quad (II.15)$$



**Figure II.11:** Représentation des efforts  $\vec{F}_1$  et  $\vec{F}_2$  concernant le cas n°2.



**Figure II.12:** Dispositif expérimental permettant de mesurer la vitesse de sédimentation d'un renfort fibreux ou filamentaire court.

avec  $V$ : la vitesse du renfort fibreux (m/s)  
 $\mu_L$ : la viscosité du liquide (Pa.s)  
 $\mathbb{S}_F$ : la surface du renfort fibreux projetée sur un plan perpendiculaire au déplacement (m<sup>2</sup>)

Cas n°2 : La masse volumique de la fibre est inférieure à celle du liquide.

Dans ce cas, le renfort fibreux au sein du liquide, est soumis à un effort  $\vec{F}_1$  dans le sens inverse de la gravité. Tout déplacement de la fibre se traduit donc par une force de viscosité  $\vec{F}_2$  dans le sens inverse du vecteur  $\vec{F}_1$ , c'est-à-dire s'opposant au mouvement de la fibre dans la direction considérée. En régime permanent, le bilan des forces appliquées au système devient donc (Figure II.11) :

$$\begin{aligned} \Sigma \vec{F} = \vec{0} &\Rightarrow -F_1 + F_2 = 0 \\ &\Rightarrow -\pi \cdot r_F^2 L_F \cdot g \cdot (\rho_L - \rho_F) + \frac{1}{2} \cdot f \cdot \mathbb{S}_F \cdot \rho_L \cdot V^2 = 0 \end{aligned} \quad (\text{II.16})$$

La loi définissant l'effort de viscosité  $\vec{F}_2$  a fait l'objet de diverses études destinées à corréler le coefficient de friction  $f$  au nombre de Reynolds  $Re$  c'est à dire à la nature de l'écoulement d'un fluide autour d'un obstacle. Malheureusement, aucune étude n'a, à ma connaissance, été publiée dans le cas d'un fluide tel que l'aluminium pur liquide s'écoulant autour d'un cylindre. De plus, toute expérience destinée à estimer le nombre de Reynolds nécessite de mesurer la vitesse de sédimentation de l'obstacle (en l'occurrence un renfort fibreux ou filamentaire) au sein de l'aluminium pur liquide. Or, l'opacité de ce fluide compromet fortement ce type d'expérience.

A première vue, il est raisonnable de supposer que l'écoulement de l'aluminium liquide de faible masse volumique autour d'un renfort fibreux de dimension micronique conduit à des nombres de Reynolds caractéristiques d'un régime laminaire ( $Re < 5$ ).

De façon à confirmer cette hypothèse, quelques expériences de sédimentation d'un renfort filamentaire ont été développées au sein d'un fluide transparent tel que l'eau dont la masse volumique et la viscosité à 25°C sont respectivement:  $\rho_L = 0.997 \text{ Kg/m}^3$  ;  $\mu_L = 1.2 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$  [13].

Un renfort filamentaire court ( $L_F = 1 \text{ cm}$ ) est immergé au sein du fluide contenu dans un tube de silice transparente de quinze millimètres de diamètre et quarante centimètres de longueur (Figure II.12). La vitesse  $V_s$  de sédimentation du filament est obtenue en mesurant le temps  $t_d$  de décantation entre deux repères fixés sur le tube. Précisons également que l'axe du filament demeure perpendiculaire à l'écoulement du début à la fin de l'expérience. Les résultats obtenus sont répertoriés dans le tableau II.1 pour le cas où l'axe du renfort fibreux est perpendiculaire à la direction de sédimentation.

Renfort fibreuse	$r_F (\mu m)$	$\rho_F (kg/m^3)$	$V (mm/s)$	$Re$
SiC ( $\sigma$ )	50	3400	20	2.25
Bore	70	2460	20	2.33
SiC(SCS6)	70	3200	25	2.91

**Tableau II.1:** Résultats expérimentaux concernant les expériences de sédimentation de différents renforts fibreux.

$d_p$ ( $\mu m$ )	$V (\mu m/s)$	$Re$
5	1.7	1.9 E-05
10	6.8	1.5 E-04
15	15.8	5.3 E-04
20	28.3	1.3 E-03
30	64.6	4.4 E-03
50	183	2.1 E-02
70	364	5.7 E-02

**Tableau II.2:** Résultats expérimentaux concernant les expériences de sédimentation de particules de SiC au sein d'un alliage d'aluminium [note interne].

L'analyse des résultats dénote donc, que le déplacement d'un renfort fibreux de taille micronique au sein d'un fluide tel que l'eau, met en évidence, dans le cas où la fibre est perpendiculaire à la direction de décantation, des nombres de Reynolds plutôt faibles dont l'ordre de grandeur correspond à la transition entre un régime d'écoulement laminaire ( $Re < 5$ ) et turbulent ( $Re > 5$ ) (Figure II.13) [9]. ( le régime laminaire se caractérise par des lignes de courants suivant la surface du solide en mouvement si bien que la résistance au déplacement est entièrement due aux forces de frottement le long de la surface de l'obstacle [10],[12]).

Si l'on considère maintenant un fluide tel que l'aluminium liquide de masse volumique supérieure à l'eau, les vitesses de sédimentation des fibres étudiées ci-dessus vont alors considérablement chuter de sorte que le nombre de Reynolds associé au déplacement d'un renfort fibreux d'axe perpendiculaire à l'écoulement devrait être faible devant ceux rapportés dans le tableau II.1. Ces présomptions sont confirmées par une étude de sédimentation de particules de carbure de silicium de diamètre  $d_p$  variable, au sein d'un alliage d'aluminium [note interne] dont la masse volumique  $\rho_L$  et la viscosité  $\mu_L$  au voisinage de la température de liquidus sont respectivement  $\rho_L=2.7 \text{ Kg/m}^3$  et  $\mu_L=1.2. 10^{-3} \text{ Pa.s}$ . Une synthèse des résultats obtenus est rapportée dans le tableau II.2 dans le cas où la fraction volumique de renfort est inférieure à 1% de sorte que l'influence de l'interaction entre particules sur la nature de l'écoulement peut être considérée négligeable.

Les nombres de Reynolds associés au déplacement de particules de diamètre  $d_p$  au sein d'un alliage d'aluminium liquide caractérisent donc un écoulement de type laminaire ( $Re < 5$ ) et confirment les présomptions énoncées précédemment. Dans ces conditions, le coefficient de frottement  $f$  s'exerçant sur un renfort fibreux d'axe perpendiculaire au déplacement s'exprime par une loi de la forme [11]:

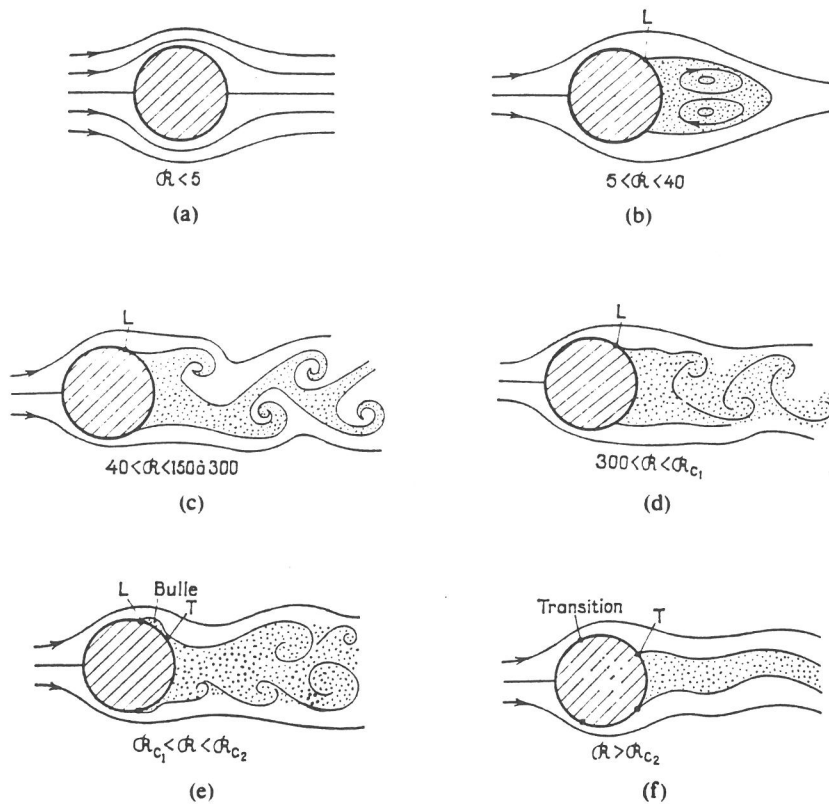
$$f_{\perp} = \frac{8 \cdot \pi}{Re \cdot \ln\left(\frac{7.4}{Re}\right)} \tag{II.17}$$

Cette relation, valable uniquement pour des nombres de Reynolds inférieurs à 0.2 [11], sera donc utilisée pour exprimer l'effort de viscosité  $\vec{F}_{2\perp}$  associé au déplacement d'un renfort fibreux au sein de l'aluminium quasi-pur à l'état liquide.

D'autre part, d'après [8], le coefficient de frottement  $f$  s'exerçant en régime laminaire sur une fibre d'axe parallèle à l'écoulement, est tel que:

$$f_{//} = \frac{1}{2} \cdot f_{\perp} \tag{II.18}$$

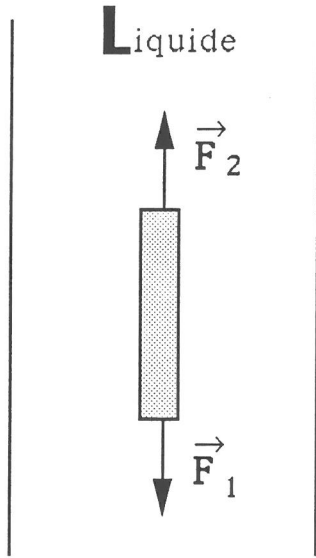
L'effort de viscosité peut alors être explicité plus en détail en fonction de l'orientation de l'axe de la fibre par rapport à l'écoulement.



**Figure II.13:** Les différents types d'écoulements autour d'un cylindre d'axe perpendiculaire au déplacement du fluide [10].

L: Point de décollement laminaire  
T: Point de décollement turbulent

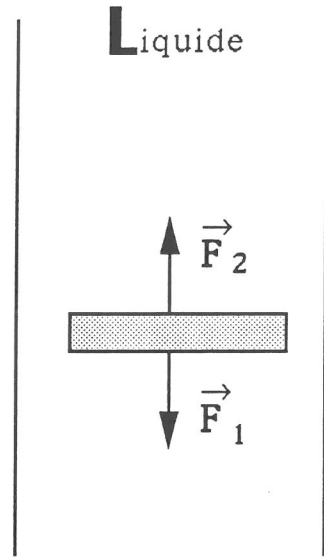
- a: Ecoulement laminaire visqueux non décollé
- b: Décollement laminaire symétrique
- c: Allée tourbillonnaire de Bénard-Karman
- d: Ecoulement subcritique
- e: Ecoulement critique
- f: Ecoulement supercritique



$$\pi \cdot r_F^2 \cdot L_F \cdot g \cdot |\rho_F - \rho_L| = \frac{\pi^2 \cdot \mu_L \cdot r_F \cdot V_y}{\ln(7.4/Re)}$$

d'où:

$$V = \frac{r_F \cdot L_F \cdot g \cdot |\rho_F - \rho_L| \cdot \ln(7.4/Re)}{\pi \cdot \mu_L} \quad (II.21)$$



$$\pi \cdot r_F^2 \cdot L_F \cdot g \cdot |\rho_F - \rho_L| = \frac{4 \cdot \pi \cdot \mu_L \cdot L_F \cdot V_y}{\ln(7.4/Re)}$$

d'où:

$$V = \frac{r_F^2 \cdot g \cdot |\rho_F - \rho_L| \cdot \ln(7.4/Re)}{4 \cdot \mu_L} \quad (II.22)$$

**Figure II.14:** Expressions de la vitesse  $V$  de la fibre pour un renfort fibreux d'axe parallèle (II.21) ou perpendiculaire (II.22) à l'écoulement dans le cas où la force  $\vec{F}_1$  est dirigée suivant l'accélération de la pesanteur.

2.2.3.1.1 - l'axe de la fibre est parallèle à la direction de décantation:

La surface du renfort projetée sur un plan perpendiculaire au déplacement se résume dans ce cas à la section  $S_F$  de la fibre.

L'effort de viscosité  $\vec{F}_{2//}$ , résultant du déplacement du renfort fibreux au sein du liquide, peut alors s'exprimer comme suit:

$$\vec{F}_{2//} = \frac{1}{2} \cdot \rho_L \cdot V^2 \cdot \frac{4 \cdot \pi}{Re \cdot \ln(7.4/Re)} \cdot \pi \cdot r_F^2 \cdot \vec{j} = \frac{\pi^2 \cdot \mu_L \cdot r_F \cdot V}{\ln(7.4/Re)} \cdot \vec{j} \quad (II.19)$$

2.2.3.1.2 - l'axe de la fibre est perpendiculaire à la direction de décantation:

La surface du renfort projetée sur un plan perpendiculaire au déplacement est représentée par le produit  $2 \cdot r_F \cdot L_F$ . En conséquence, l'effort de viscosité associé au déplacement du renfort fibreux au sein du liquide s'exprime par la relation suivante:

$$\vec{F}_{2\perp} = \frac{1}{2} \cdot \rho_L \cdot V^2 \cdot \frac{8 \cdot \pi}{Re \cdot \ln(7.4/Re)} \cdot 2 \cdot r_F \cdot L_F \cdot \vec{j} = \frac{4 \cdot \pi \cdot \mu_L \cdot L_F \cdot V}{\ln(7.4/Re)} \cdot \vec{j} \quad (II.20)$$

En régime permanent, le bilan des forces appliquées au système ( $\sum \vec{F} = \vec{0}$ ) donne accès à la vitesse de décantation de chaque renfort au sein de l'aluminium quasi-pur à l'état liquide dont la masse volumique  $\rho_L$  et la viscosité  $\mu_L$  au voisinage de la température du liquidus sont estimées à [13]:

- $\rho_L = 2370 \text{ kg/m}^3$ ;
- $\mu_L = 1.2 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$ .

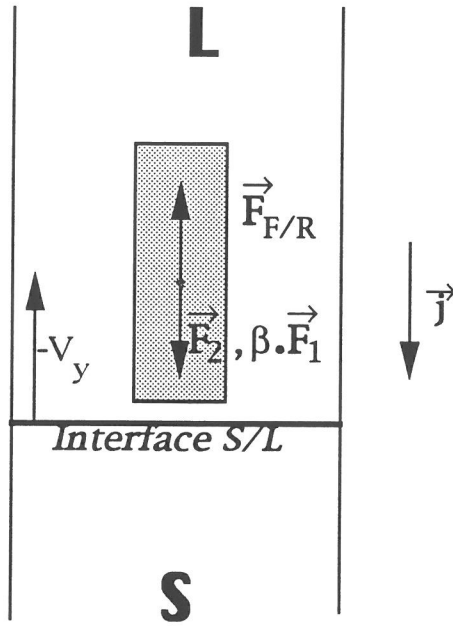
Exprimons maintenant la vitesse de décantation d'un renfort fibreux pour chacun des deux cas étudiés précédemment. A titre d'exemple, les schémas proposés sur la figure II.14 concernant le comportement d'un renfort fibreux au sein d'un fluide, considèrent le cas pour lequel la force  $\vec{F}_1$  est dirigée suivant l'accélération de la pesanteur. En revanche, les relations (II.21) et (II.22) sont générales puisque le terme  $(\rho_F - \rho_L)$  est pris en valeur absolue. Les vitesses de décantation des renforts étudiés sont répertoriées dans le tableau II.3.

Notons dans un premier temps, que les longueurs de fibres reportées dans le tableau II.3 représentent en fait, une longueur moyenne mesurée après dissolution de la matrice du matériau composite élaboré.



N°	renfort fibreux	fluide	$r_F(\mu m)$	$\rho_F(kg/m^3)$	$L_F(\mu m)$	direction de décantation	position de l'axe du renfort par rapport à la direction de décantation	vitesse de décantation (mm/s)
1	SiC (nicalon)	A5	6	2550	200	↓	// ⊥	2.7 0.1
2	Carbone (P100)	A5	4	2000	200	↑	// ⊥	3.7 0.1
3	Alumine (FP)	A5	10	3900	200	↓	// ⊥	18.4 1.5
4	SiC (σ)	A5	50	3400	500	↓	// ⊥	25.6 8.1
5	Bore	A5	70	2460	500	↓	// ⊥	8.9 2.2
6	SiC (σ)	eau	50	3400	10000	↓	⊥	19.0
7	Bore	eau	70	2460	10000	↓	⊥	18.0
8	SiC(SCS6)	eau	70	3200	10000	↓	⊥	23.0

**Tableau II.3:** Vitesses de décantation de divers renforts fibreux au sein de l'aluminium quasi-pur ou de l'eau.



**Figure II.15:** Représentation des efforts  $\vec{F}_1$ ,  $\vec{F}_2$  et de répulsion du front de solidification concernant un renfort fibreux d'axe est perpendiculaire à l'interface S/L dans le cas où la masse volumique  $\rho_F$  de la fibre est supérieure à celle du liquide  $\rho_L$  ( $\beta > 0$ ). ( $\beta < 0$  considère le cas où  $\rho_F < \rho_L$ )

D'autre part, l'examen des résultats obtenus met en évidence que :

- la plupart des renforts fibreux (à l'exception des fibres de carbone) sédimente au sein de l'aluminium liquide, dans le sens de la gravité ;
- pour l'ensemble des renforts étudiés, la vitesse de décantation est beaucoup plus importante dans le cas où l'axe de la fibre se positionne parallèlement à la direction de sédimentation.

A ce stade de notre étude, exprimons les efforts précédemment explicités au cours d'un phénomène d'absorption ou de rejet.

### 2.2.3.1.3 - phénomène de rejet:

Soit un renfort fibreux en contact avec l'interface S/L et soumis à un effort de pesanteur  $\vec{F}_1$  au sein du liquide. Lorsque le front de solidification animé d'une vitesse constante  $-V_y$  se déplace en repoussant la fibre, les efforts de viscosité se traduisent immédiatement par une force  $\vec{F}_2$  en sens inverse du déplacement, soit vers le front de solidification. Le bilan des forces appliquées au système se traduit alors par la relation suivante (Figure II.15) :

$$\beta \cdot F_1 + F_2 - F_{F/R} = 0 \quad (II.23)$$

où:  $F_{F/R}$  représente l'effort exercé par le front de solidification sur le renfort fibreux et  $\beta$ , un paramètre prenant pour valeur +1 ou -1 selon que la masse volumique de la fibre est respectivement supérieure ou inférieure à celle du liquide.

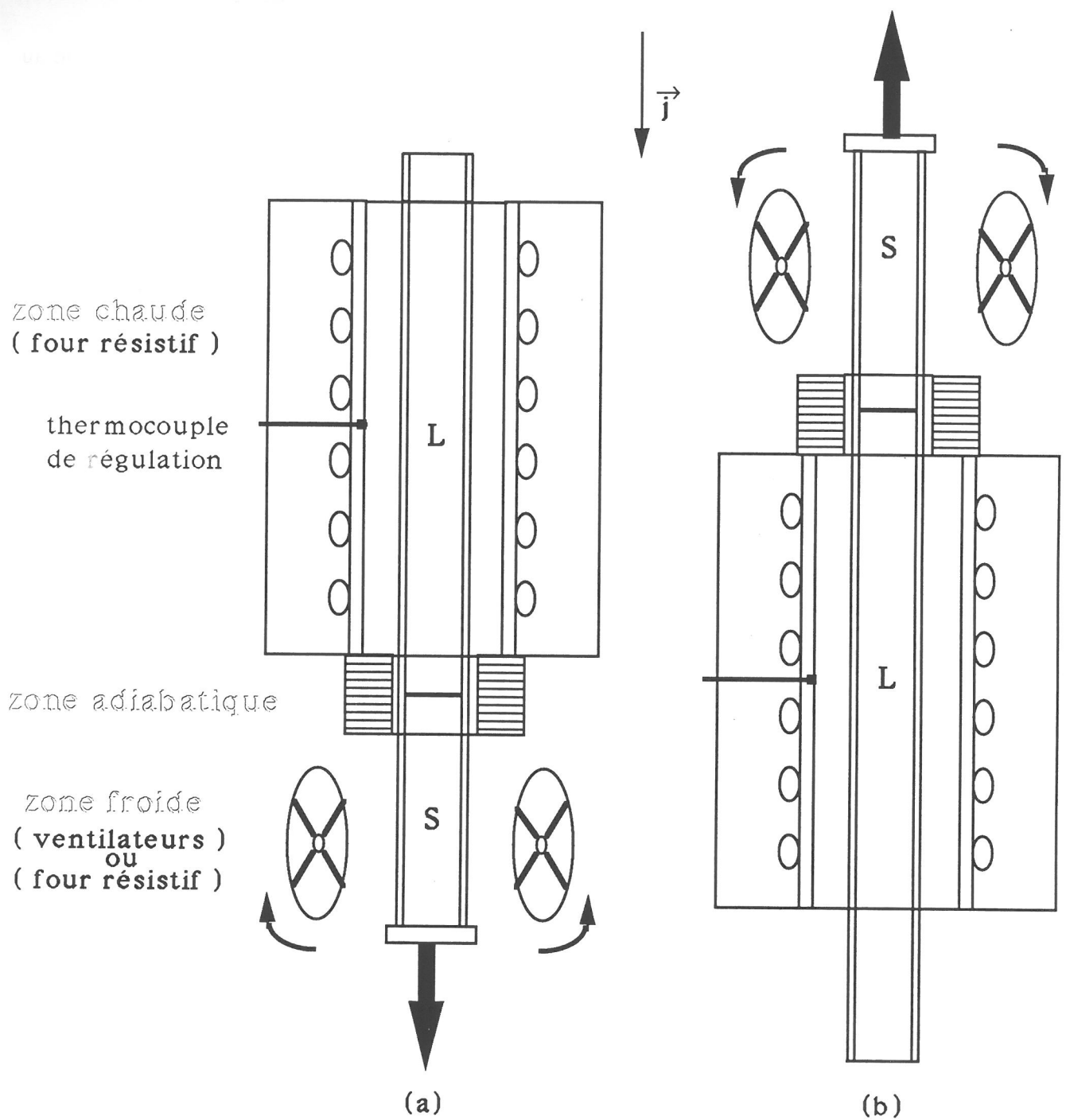
Dans le cas où l'axe de la fibre est perpendiculaire au front de solidification:

$$\pi \cdot r_F^2 \cdot L_F \cdot g \cdot (\rho_F - \rho_L) + \frac{\pi^2 \cdot \mu_L \cdot r_F \cdot V_y}{\ln(7.4/Re)} = F_{F/R} \quad (II.24)$$

Dans le cas où l'axe de la fibre est parallèle au front de solidification:

$$\pi \cdot r_F^2 \cdot L_F \cdot g \cdot (\rho_F - \rho_L) + \frac{4 \cdot \pi \cdot \mu_L \cdot L_F \cdot V_y}{\ln(7.4/Re)} = F_{F/R} \quad (II.25)$$

Au cours du phénomène de rejet, toute avancée  $y$  de l'interface S/L se traduit par un déplacement  $y$  du renfort fibreux. Le travail exercé par le front de solidification pour repousser la fibre conduit alors à une augmentation de l'énergie potentielle du système. La variation d'énergie de Gibbs associée à une élévation de l'énergie potentielle du système depuis l'état 0 vers l'état 1 s'exprime donc de la façon suivante:



**Figure II.16:** Schéma d'un four de bridgman destiné à la mise en oeuvre d'expériences de solidification dirigée dans le sens inverse de la gravité (b) ou dans le sens de la gravité (a).

$$\Delta G_{0-force}^1 = + F_F / R \cdot y \quad (II.26)$$

#### 2.2.3.1.4 - *phénomène d'absorption:*

Au cours d'une avancée  $y$  de l'interface S/L depuis l'état **O** vers l'état **2**, le renfort fibreux est resté immobile. Le front de solidification n'a donc fourni aucune énergie pour le repousser, si bien que la variation d'énergie de Gibbs associée au travail de la force exercée par le front de solidification est nulle :

$$\Delta G_{0-force}^2 = 0 \quad (II.27)$$

#### 2.2.3.2 - Efforts complémentaires:

Dans un premier temps, le bilan des forces appliquées au système qui vient d'être fait pourrait être considéré complet. Or, une étude détaillée des phénomènes physiques susceptibles de se développer au cours d'un processus de solidification dirigée conduit à considérer l'existence d'efforts complémentaires. L'influence de ces efforts sur le phénomène d'absorption ou de rejet sera analysée à la suite des observations expérimentales. Afin de comprendre leurs origines, une explication succincte du procédé de solidification dirigée est proposée.

Un échantillon d'un matériau composite à matrice d'aluminium est disposé au sein d'un appareillage de fusion-solidification caractérisé par trois zones [3],[4],[15] (Figure II.16):

- une zone dite "chaude" représentée par un four chauffé au-dessus de la température de liquidus de la matrice ;
- une zone adiabatique dans laquelle coexiste uniquement un flux de chaleur suivant l'axe  $\vec{j}$  ;
- une zone dite "froide" au sein de laquelle il est possible de varier la puissance de refroidissement.

Une interface S/L séparant une portion solide d'une zone liquide de l'échantillon peut alors être translatée, soit dans le sens de la gravité (Figure II.16b), soit dans le sens inverse (Figure II.16a), en déplaçant l'échantillon soit vers le haut, soit vers le bas. Supposons que les fibres soient repoussées par le front de solidification, on peut alors légitimement se demander si l'on retrouvera les fibres au sein du matériau lorsque l'opération de solidification dirigée sera terminée.

Quelques expériences préliminaires de solidification dirigée sur barreau composite ont montré, dans le cas où les fibres sont rejetées par l'interface S/L, que le renfort fibreux demeure au sein du matériau dans la zone solidifiée en dernier. Cette observation permet donc d'envisager

l'existence d'une barrière vis à vis de la progression des fibres au niveau de l'extrémité supérieure du barreau c'est à dire à la surface libre de l'échantillon. La fine pellicule d'alumine, résultant de l'oxydation de l'aluminium liquide à la surface libre de l'échantillon, serait donc susceptible de bloquer la progression du renfort fibreux, l'empêchant ainsi de quitter la matrice. A l'intérieur du four de Bridgman, les fibres courtes au sein de la matrice liquide sont donc confinées dans une zone où :

- l'extrémité supérieure constituée d'une pellicule d'alumine empêche la progression du renfort fibreux hors du liquide;
- l'extrémité inférieure est représentée par l'interface S/L se déplaçant vers l'extrémité supérieure de l'échantillon.

#### 2.2.3.2.1 - l'effort de Darcy:

La loi de Darcy trouve son application dans le domaine des matériaux composites préparés par squeeze-casting (infiltration d'un métal liquide à travers une préforme fibreuse). On peut en effet calculer l'effort critique à appliquer sur un bain de matrice liquide pour imprégner une préforme fibreuse de perméabilité donnée à partir de cette loi. Dans notre cas, considérons que les fibres courtes se comportent également, à un instant donné, comme un réseau fibreux plus ou moins complexe à l'intérieur duquel coexistent des pores de géométrie et taille variables. Tout rejet de fibres à l'interface S/L induit alors une source de résistance à la progression du front de solidification. Elle résulte des forces de frottement exercées par le liquide s'écoulant à l'intérieur du réseau fibreux vers l'interface S/L. Cet effort, dépendant en particulier de la vitesse de progression du front de solidification et de la longueur de la préforme, donne l'expression suivante pour la vitesse de Darcy :

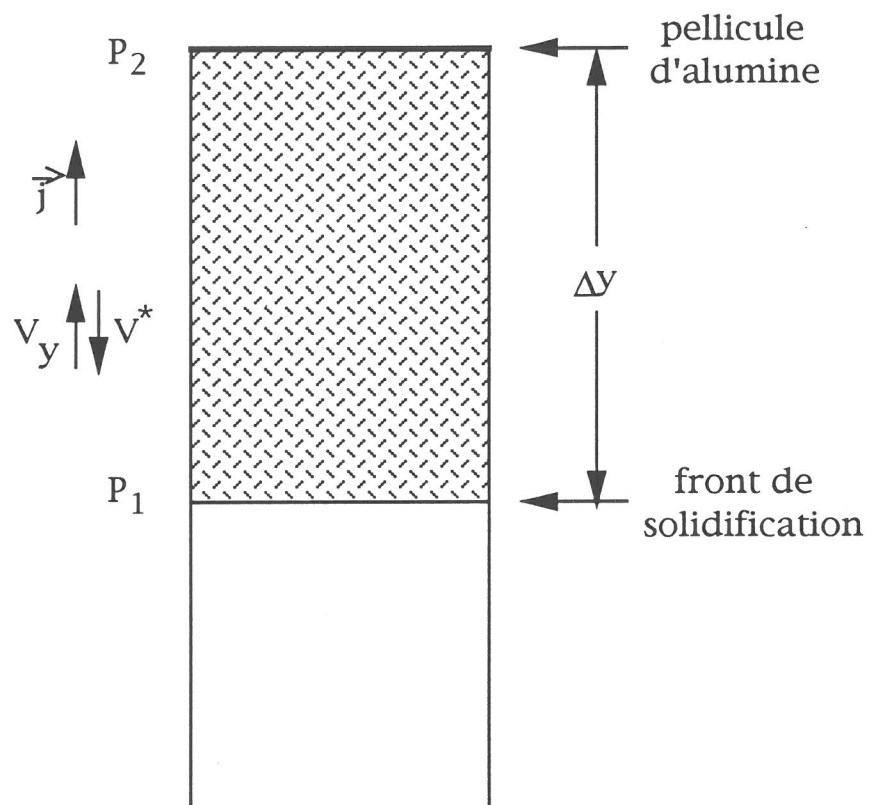
$$\vec{V}^* = - \frac{K}{\mu_L} \cdot (\vec{\text{g r a d P}} - \rho_L \cdot \vec{g}) \quad (\text{II.28})$$

La perméabilité  $K$  de la préforme fibreuse est définie de façon empirique par la loi de Kosney-Karman [16].

$$K = \frac{(1 - V_F)^3}{80 \cdot V_F^2 \cdot \left( \frac{1}{2 \cdot r_F} + \frac{1}{2 \cdot L_F} \right)^2} \quad (\text{II.29})$$

où:  $V_F$  est la fraction volumique de fibres (%)

Lors de l'infiltration d'une préforme,  $P$  représente la pression à appliquer sur le bain de matrice liquide pour imprégner le réseau fibreux. Par analogie, dans une expérience de



**Figure II.17:** Représentation schématique du front de solidification repoussant le réseau fibreux.

solidification dirigée, l'écoulement du liquide à travers le réseau fibreux se produit lorsque le front de solidification se déplace et repousse cette masse fibreuse qui exerce alors une pression  $P_1$  sur l'interface S/L (Figure II.17). La vitesse  $V^*$  d'écoulement du liquide dans la préforme est alors donnée comme suit:

$$\vec{V}^* = - \frac{K}{\mu_L} \cdot \left[ \left( \frac{P_2 - P_1}{\Delta y} \right) \cdot \vec{j} + \rho_L \cdot \vec{g} \cdot \vec{j} \right] \quad (\text{II.30})$$

où  $\Delta y$  représente la longueur de la préforme ( $\Delta y = L_P$ ) et  $P_2$ , la pression appliquée par le réseau fibreux sur la pellicule d'alumine. Cette pression étant supposée négligeable, l'expression de la vitesse d'écoulement s'exprime comme suit:

$$\vec{V}^* = - \frac{K}{\mu_L} \cdot \left[ \frac{-P_1}{\Delta y} + \rho_L \cdot \vec{g} \right] \cdot \vec{j} \quad (\text{II.31})$$

D'autre part, la vitesse de Darcy  $V^*$  est proportionnelle à la vitesse de solidification suivant la loi :  $V^* = (1 - V_F) \cdot V_y$ . La vitesse du front de solidification s'exprime donc par la relation (II.32):

$$V_y = - \frac{K}{\mu_L \cdot (1 - V_F)} \cdot \left[ \frac{-P_1}{\Delta y} + \rho_L \cdot \vec{g} \right] \quad (\text{II.32})$$

La pression de Darcy  $P_1$  découle alors de la relation (II.32):

$$P_1 = \rho_L \cdot \vec{g} \cdot L_P + \frac{\mu_L \cdot V_y \cdot L_P}{(1 - V_F)^2} \cdot 80 \cdot V_F^2 \cdot \left( \frac{1}{2 \cdot r_F} + \frac{1}{2 \cdot L_F} \right)^2 \quad (\text{II.33})$$

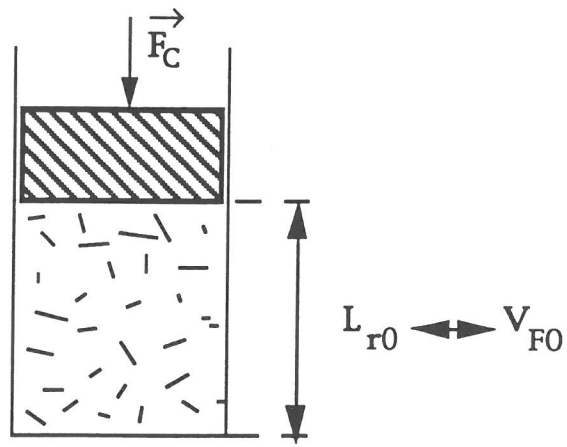
Cette pression s'applique en fait sur la section totale des fibres situées au niveau du front de solidification. La force  $\vec{F}_d$  correspondante est alors donnée par:

$$\vec{F}_d = P_1 \cdot \vec{S}_F \quad (\text{II.34})$$

où  $\vec{S}_F$  représente la fraction surfacique de fibres au niveau de l'interface S/L.

Considérons à nouveau le modèle de l'interaction d'une fibre, située au sein de la cellule élémentaire, avec le front de solidification: L'effort de Darcy défini par la relation (II.34) doit être ramené à une force unitaire  $\vec{F}_{d(u)}$  en divisant la force de Darcy  $\vec{F}_d$  par le nombre de fibres  $n_F$  supposées en contact avec le front de solidification.





**Figure II.18:** Représentation schématique du montage de compression.

renfort fibreux	$r_F(\mu m)$	$L_F(\mu m)$	loi de comportement $F_C = f(V_F)$
SiC (nicalon)	6	200	$F_C = 2 \cdot V_F^6$
Carbone (P100)	4	200	$F_C = 1,5 \cdot V_F^6$
Alumine (FP)	10	200	$F_C = 5 \cdot V_F^6$
SiC ( $\sigma$ )	50	500	$F_C = V_F^4$
Bore	70	500	$F_C = 1,2 \cdot V_F^4$

**Tableau II.4:** Loi de comportement  $F_C = f(V_F)$  concernant divers renforts fibreux.

$$\vec{F}_d(u) = \frac{\vec{F}_d}{n_F} \quad (II.35)$$

#### 2.2.3.2.2 - l'effort de compression:

On considère à nouveau que les fibres courtes se comportent comme un réseau fibreux de fraction volumique donnée à l'intérieur de la zone de matrice liquide délimitée par :

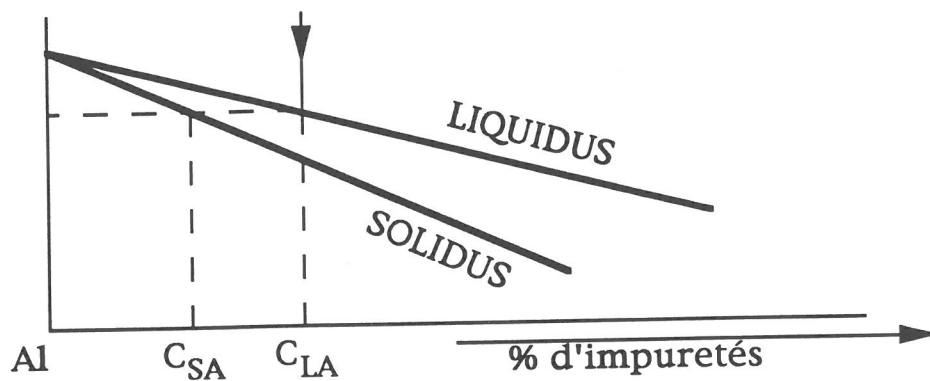
- le front de solidification se déplaçant vers l'extrémité supérieure de l'échantillon ;
- la couche d'alumine immobile à la surface libre de l'échantillon, empêchant toute progression du renfort fibreux hors du liquide.

Dans ce cas, tout rejet du renfort fibreux à l'interface S/L conduit à une augmentation de la fraction volumique de fibres au sein du bain de liquide. Le réseau fibreux est alors comprimé entre la couche d'alumine et le front de solidification, engendrant de ce fait, une contrainte de compression sur l'interface S/L.

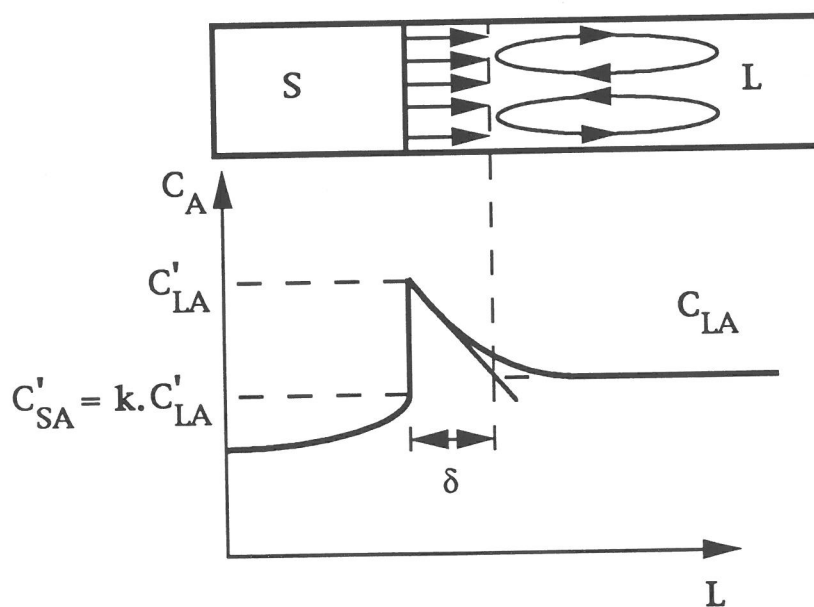
L'étude bibliographique s'étant révélée infructueuse quant à l'estimation quantitative de cet effort, quelques expériences de compression de fibres courtes au sein d'un tube de silice transparente furent développées. De façon évidente, cette étude ne prétend pas refléter exactement le phénomène physique susceptible de se produire au cours d'une expérience de solidification dirigée mais propose une simulation approchée du comportement du renfort fibreux soumis à un effort de compression. En effet, les expériences ont été effectuées en présence d'une matrice représentée par l'air présent entre chaque fibre dont la compressibilité est différente de l'aluminium pur à l'état liquide.

Des fibres céramiques courtes, disposées dans un tube de silice transparente de rayon  $r=7.5$  mm, occupent un volume  $V=L_{T0} \cdot \pi \cdot r^2$  ( $L_{T0}$  représente l'épaisseur du matelas fibreux au sein du tube) correspondant à une fraction volumique  $V_{F0}$  (Figure II.18). Un effort connu, appliqué sur la préforme fibreuse de manière à la comprimer, conduit alors à une augmentation supposée homogène de la fraction volumique de fibres, si bien qu'il est possible, après l'application de diverses forces, de définir une loi liant l'effort appliqué sur une fibre  $\vec{F}_C$  à la fraction volumique résultante. Les résultats obtenus sur divers renforts fibreux sont reportés dans le tableau II.4.

L'examen de ce tableau nous indique que la loi de comportement  $F_C = f(V_F)$  dépend des dimensions de la fibre et donc par conséquent, de la nature du renfort fibreux. D'autre part, l'effort de compression  $F_C$  est d'autant plus important que les dimensions du renfort fibreux augmentent. En outre, on ne peut guère se prononcer quant à une sensibilité plus ou moins marquée de l'effort de compression à l'égard du rayon ou de la longueur de la fibre.



**Figure II.19:** Représentation schématique des températures de liquidus et solidus en fonction de la concentration en impuretés.



**Figure II.20:** profil de composition d'un alliage en cours de solidification dirigée.

#### 2.2.4 - Ségrégation d'éléments d'alliages au cours d'une expérience de solidification dirigée:

Au sein des alliages d'aluminium couramment utilisés en fonderie, la diversité des éléments d'alliage ou impuretés présentes (Si, Cu, Mg, Li, etc....) conduit à des diagrammes d'équilibres multiconstituants très complexes. En revanche, de façon quasi-générale, ces éléments d'alliage s'avèrent plus solubles dans le liquide que dans le solide (c'est le cas des quatre éléments cités précédemment), si bien que les températures de liquidus et de solidus sont des fonctions décroissantes de la concentration en impuretés (Figure II.19) [4].

De ce fait, les coefficients de partage  $k$  des éléments en solution au sein de l'aluminium, définis par le rapport  $k = C_S / C_L$ , sont pour la plupart des alliages d'aluminium couramment utilisés, inférieurs à 1 et souvent constants dans une large gamme de composition. Lorsqu'une petite quantité de liquide de concentration en soluté  $C_{LA}$  est solidifiée, la concentration  $C_{SA}$  en soluté du solide formé est telle que  $C_{SA} = k \cdot C_{LA} < C_{LA}$ . Le solide a donc rejeté dans le liquide, une quantité de soluté correspondant à la différence  $C_{LA} \cdot (1 - k)$  [4]. La concentration en soluté A augmente donc dans le liquide au cours de la solidification. Il s'ensuit que la composition du solide formé évolue suivant une loi dépendant de la façon dont le soluté rejeté se répartit dans le liquide.

En pratique, on considère qu'une expérience de solidification dirigée se caractérise par: (Figure II.20) [3]

- une diffusion quasi-nulle des impuretés dans le solide ;
- un enrichissement de la concentration en soluté au voisinage de l'interface S/L, c'est-à-dire à l'intérieur d'une couche limite de transfert massique  $\delta$  au sein de laquelle le soluté est transféré uniquement par diffusion ;
- une homogénéisation du liquide par convection en avant de cette couche limite.

Considérons maintenant le phénomène de rejet schématisé à la figure II.1 : tout déplacement  $y$  de l'interface S/L s'accompagne d'une part, d'une translation  $y$  du renfort fibreux, d'autre part d'un rejet de soluté au niveau du front de solidification. La localisation de la fibre au niveau du front de solidification constitue une barrière à l'égard du transfert du soluté rejeté. En conséquence, la concentration en soluté augmente sans doute notablement dans la zone située entre le front de solidification et le renfort fibreux conduisant à un abaissement de la température d'équilibre de l'élément d'interface S/L en regard de la fibre. Ce phénomène entraîne au niveau de la zone perturbée, l'apparition d'une interface S/L de type concave susceptible de favoriser l'absorption du renfort fibreux.

Toute estimation quantitative de ce phénomène en terme de variation d'énergie de Gibbs nécessite une modélisation qui ne peut que rendre plus complexe la prise en compte globale des phénomènes déjà étudiés dans un modèle dont le développement fait l'objet de la troisième

partie de ce chapitre. Les phénomènes liés à la ségrégation d'éléments d'alliage seront donc laissés de coté dans le cadre de notre étude.

### 2.3 - DEVELOPPEMENT DU MODELE:

Dans ce paragraphe, nous développerons en parallèle les deux cas évoqués au chapitre 2.1, relatifs aux deux positions du renfort fibreux par rapport à l'interface S/L.

La variation d'énergie de Gibbs du système associée à un phénomène de rejet de la fibre à l'interface S/L prend alors en considération les divers mécanismes ayant subi une évolution depuis l'état 0 vers l'état 1 :

Pour le cas  $\perp$ : (synthèse des relations (II.2) et (II.26))

$$\Delta G_{0-\perp}^1 = -\Delta H \cdot S_F \cdot y - \lambda_F \cdot S_F \cdot G_{F1} \cdot t_0 + \lambda_S \cdot S_F \cdot G_{S1} \cdot t_0 + F_{F/R(\perp)} \cdot y \quad (II.36)$$

Pour le cas  $//$ : (synthèse des relations (II.3) et (II.26))

$$\Delta G_{0-//}^1 = -2 \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot y - 2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{F1} \cdot t_0 + 2 \cdot \lambda_S \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{S1} \cdot t_0 + F_{F/R(//)} \cdot y \quad (II.37)$$

De même, au cours du phénomène d'absorption, la variation d'énergie de Gibbs du système depuis l'état 0 vers l'état 2 s'exprime par la relation suivante :

Pour le cas  $\perp$ : (synthèse des équations (II.4) et (II.6)) :

$$\Delta G_{0-\perp}^2 = -\lambda_F \cdot S_F \cdot G_{F2} \cdot t_0 + \lambda_S \cdot S_F \cdot G_{S2} \cdot t_0 + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL} \quad (II.38)$$

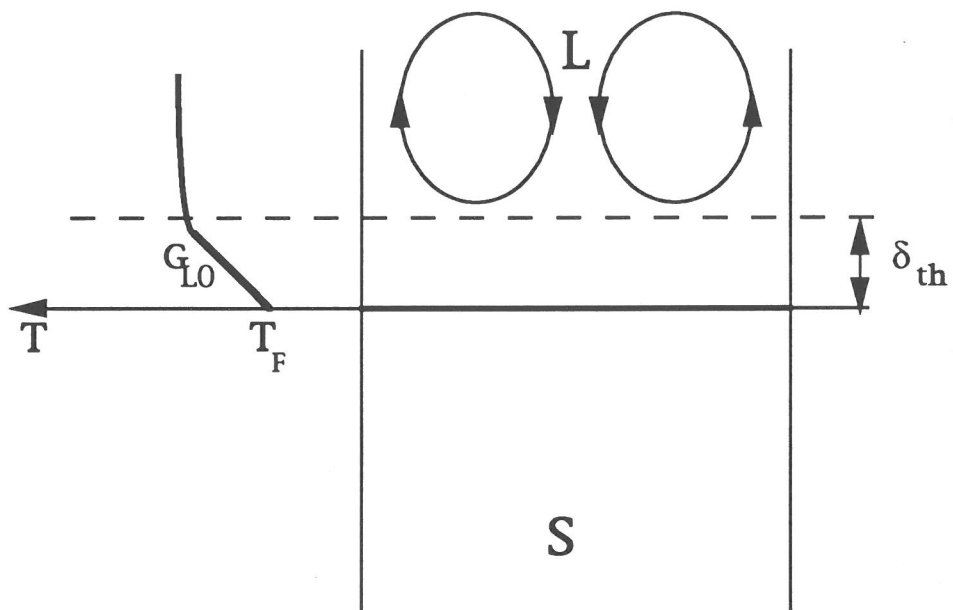
Pour le cas  $//$ : (synthèse des équations (II.5) et (II.12)) :

$$\Delta G_{0-//}^2 = -2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{F2} \cdot t_0 + 2 \cdot \lambda_S \cdot L_F \cdot r_F \cdot G_{S2} \cdot t_0 + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F} \cdot y \cdot \sigma_{SL} \quad (II.39)$$

Le critère destiné à prédire l'évolution du système vers l'un ou l'autre des deux phénomènes est représenté par la variation d'énergie de Gibbs :  $\Delta G_1^2 = \Delta G_0^2 - \Delta G_0^1$

Pour le cas  $\perp$ : (synthèse des relations (II.36) et (II.38))

$$\Delta G_{1-\perp}^2 = \Delta H \cdot S_F \cdot y - \lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{F2} - G_{F1}) \cdot t_0 + \lambda_S \cdot S_F \cdot (G_{S2} - G_{S1}) \cdot t_0 - F_{F/R(\perp)} \cdot y + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL} \quad (II.40)$$



**Figure II.21:** Représentation schématique de la couche limite de transfert thermique  $\delta_{th}$ , du gradient thermique dans le liquide au voisinage du front de solidification et du mouvement convectif de volume.

Pour le cas //: (synthèse des relations(II.37) et(II.39))

$$\Delta G_{1-//}^2 = 2 \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot y - 2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{F2} - G_{F1}) \cdot t_0 + 2 \cdot \lambda_S \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{S2} - G_{S1}) \cdot t_0 - F_{F/R(//)} \cdot y + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F \cdot y} \cdot \sigma_{SL} \quad (II.41)$$

2.3.1 - Détermination des grandeurs  $\Delta G_{F1}^2 = G_{F2} - G_{F1}$  et  $\Delta G_{S1}^2 = G_{S2} - G_{S1}$ :

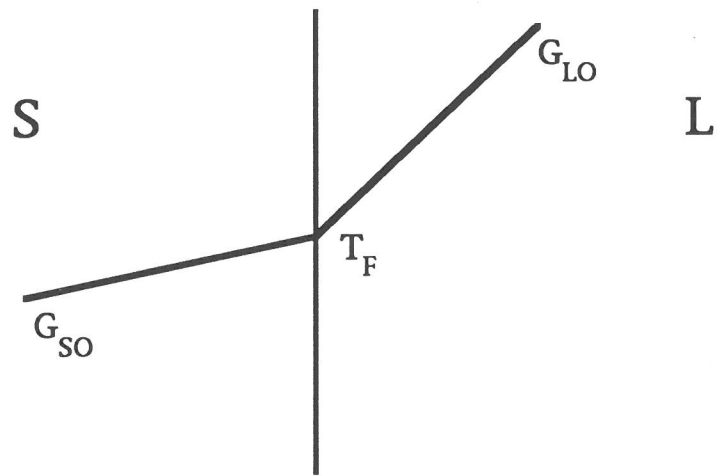
La détermination des grandeurs physiques  $\Delta G_{F1}^2$  et  $\Delta G_{S1}^2$  qui va suivre s'applique à chacun des cas (//) et ( $\perp$ ). En revanche, les explications scientifiques des phénomènes thermiques s'appuieront uniquement sur le cas ( $\perp$ ).

#### 2.3.1.1 - Etude des transferts thermiques à vitesse de solidification nulle:

Considérons dans un premier temps, un système solide/liquide représenté par un métal pur ou un alliage au sein d'un appareil de solidification dirigée de type Bridgman vertical. Les transferts de chaleur et/ou de masse s'effectuent alors par convection naturelle dans le liquide en dehors de la couche limite de transfert thermique et/ou massique  $\delta$  [3]. Les transferts convectifs, provoqués par les différences de densité résultant des gradients thermiques ou de concentration existants au sein du liquide, s'avèrent difficilement quantifiables. Cependant, de façon quasi-générale, le gradient thermique existant est stabilisant (Figure II.21), ce qui signifie en fait que le liquide de plus faible température, c'est-à-dire ayant la densité la plus élevée, reste dans la région basse du liquide [6]. Cette remarque devrait se traduire par une disparition des transferts convectifs au sein du liquide. Toutefois, certaines contraintes technologiques empêchent d'éliminer totalement les gradients thermiques horizontaux et par conséquent, la convection résiduelle qui en résulte peut suffire à entraîner des transferts convectifs de chaleur et de soluté [6]. Face à l'incertitude associée à l'existence de mouvements convectifs au sein de l'appareil de solidification dirigée utilisé, nous supposons, en première approximation, que la zone liquide de l'échantillon n'est le siège d'aucun brassage d'origine convective.

Considérons maintenant un système à trois phases comportant la matrice liquide, la matrice solide et le renfort fibreux. Lorsque le front de solidification est immobile, un équilibre thermique s'établit entre le liquide et le solide loin de la zone susceptible d'être perturbée par la présence d'une fibre. Cet équilibre peut s'exprimer par la relation suivante:

$$\lambda_L \cdot G_{LO} = \lambda_S \cdot G_{SO} \quad (II.42)$$



**Figure II.22:** Allure des gradients thermiques au sein du liquide et du solide à vitesse de solidification nulle, hors de la cellule élémentaire.



Dans le cas de l'aluminium, l'importance de la conductivité thermique  $\lambda_S$  du solide par rapport à celle du liquide  $\lambda_L$  ( $\lambda_S/\lambda_L \approx 2$ ) conduit à un gradient thermique  $G_{S0}$  faible dans le solide par rapport à celui du liquide  $G_{L0}$  (Figure II.22).

Aux abords de la zone susceptible d'être perturbée, la présence d'un troisième constituant représenté par le renfort fibreux, de conductivité thermique  $\lambda_F$ , modifie les échanges de chaleur au sein du système étudié, de sorte que le profil de température résultant devient complexe. L'estimation des gradients thermiques nécessite de considérer plusieurs cas:

#### 2.3.1.1.1 - La conductivité thermique du liquide $\lambda_L$ est supérieure à celle de la fibre $\lambda_F$ :

A l'instant  $t=0$ , la vitesse de solidification étant nulle, la fibre est immergée au sein du liquide loin de l'interface S/L (Figure II.23a), c'est-à-dire en dehors d'une zone transitoire où la température du liquide est égale à celle de la fibre ( $T_{L0}=T_{F0}$ ). Suivant cette configuration, le gradient thermique  $G_{F0}$  est supposé tendre vers  $G_{L0}$  et la fibre ne perturbe en aucun cas les transferts de chaleur au niveau du front de solidification. Les lignes isothermes représentées sur la figure II.23a, demeurent alors parallèles à l'interface S/L et mettent en évidence, par un espacement plus faible, un gradient thermique plus fort dans le liquide que dans le solide. Dès lors que le renfort fibreux, s'approchant du front de solidification immobile ( $t \neq 0$ ) (Figure II.23b) pénètre à l'intérieur de la zone transitoire, une perturbation du champ thermique s'établit dans la fibre et le solide au voisinage de la cellule élémentaire, respectivement sur une distance caractéristique  $d_F$  et  $d_S$ . Une déstabilisation convexe de l'interface S/L se développe alors pour prendre, en régime permanent, une taille et une géométrie bien définies. Ce phénomène résulte en fait de l'importance du flux thermique dans le liquide par rapport à celui de la fibre, laquelle se comporte alors comme une barrière thermique vis-à-vis du transfert de chaleur depuis la zone dite "chaude" vers le front de solidification. L'existence de cette perturbation géométrique conduit alors, d'une part à une augmentation du gradient thermique dans la fibre, lequel est de ce fait supérieur à celui du liquide environnant ( $G_{F0} > G_{L0}$ ), d'autre part à une diminution du gradient thermique dans le solide.

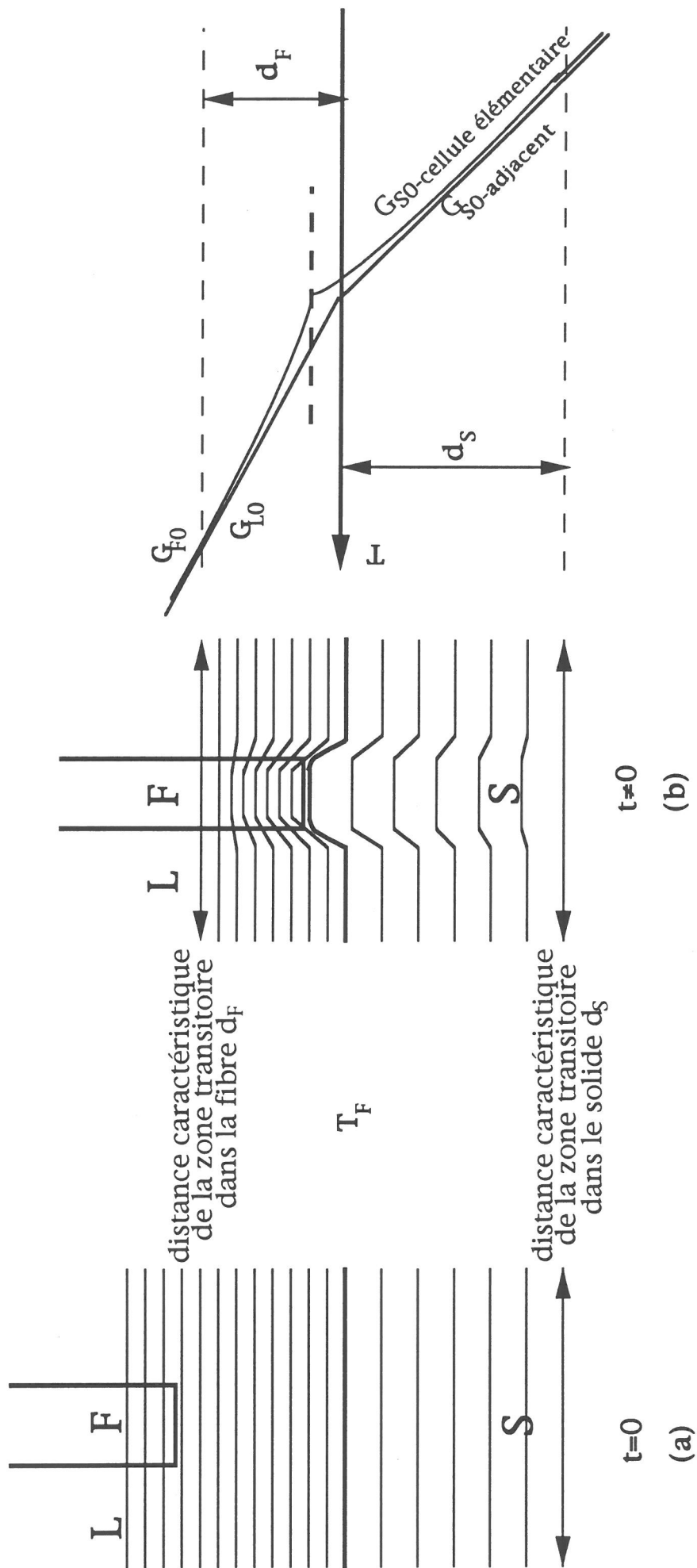
$$G_{F0} = G_{L0} + G_1 \quad (\text{II.43})$$

$$G_{S0}^* = G_{S0}^\circ - G_2 \quad (\text{II.44})$$

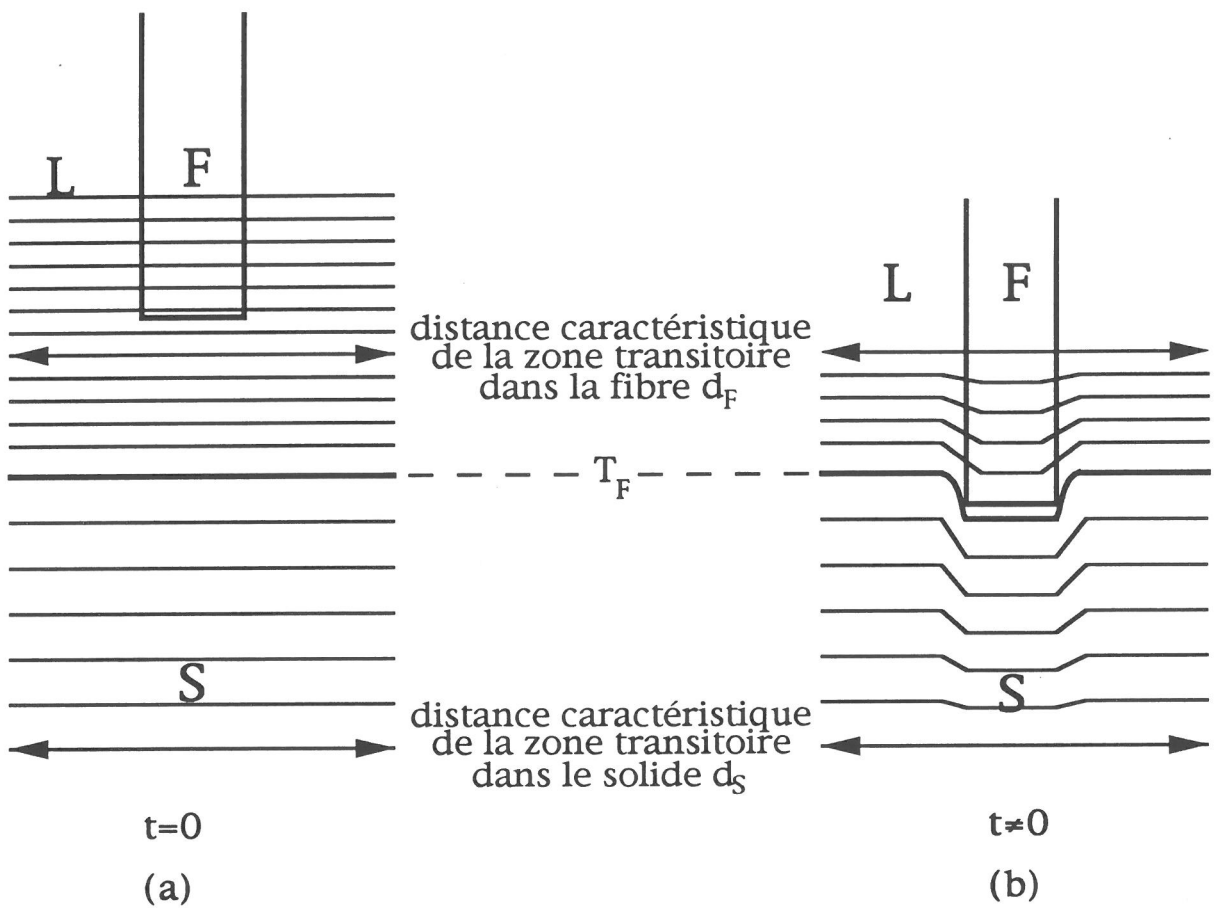
\*: dans la cellule élémentaire

° en dehors de la cellule élémentaire

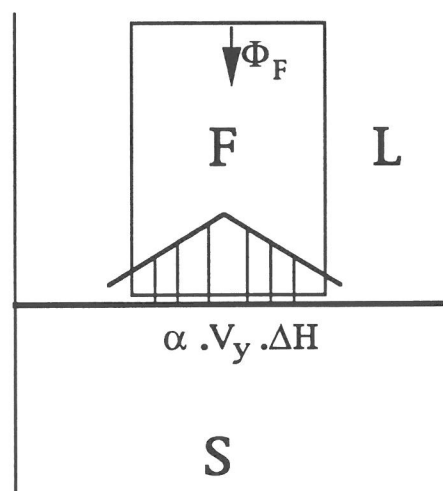
En régime permanent, l'existence d'un profil de température proche de celui exposé sur la figure II.23b, permet de supposer au sein de la cellule élémentaire un équilibre thermique entre la fibre et le solide tel que:



**Figure II.2.3:** Représentation schématique des isothermes concernant un renfort fibreux de faible conductivité thermique éloigné du front de solidification (a), ou proche de l'interface S/L (b).



**Figure II.24:** Allure des isothermes concernant un renfort fibreux de forte conductivité thermique par rapport au liquide environnant.



**Figure II.25:** Représentation des flux thermiques dans la fibre au cours d'un phénomène de rejet.

$$\lambda_F G_{FO} = \lambda_S \cdot G_{SO}^*$$

$$\Rightarrow \lambda_F (G_{LO} + G_1) = \lambda_S \cdot (G_{SO}^\circ - G_2) \quad (II.45)$$

$$\text{où } G_2 = G_{SO}^\circ - \frac{\lambda_F}{\lambda_S} (G_{LO} + G_1)$$

2.3.1.1.2 - *La conductivité thermique du liquide  $\lambda_L$  est inférieure à celle de la fibre  $\lambda_F$ :*

Considérons maintenant une situation initiale telle que celle schématisée sur la figure II.24a. Lorsque le renfort fibreux approche l'interface S/L, une perturbation de type concave apparaît au niveau du front de solidification, résultant d'un flux thermique très important au sein de la fibre par rapport à celui du liquide. Par analogie aux phénomènes présentés dans le paragraphe 2.3.1.1.1, une déstabilisation du profil thermique au voisinage de la cellule élémentaire conduit à une augmentation du gradient thermique dans le solide  $G_{SO}^* = G_{SO}^\circ + G_2$ , associée à une diminution du gradient thermique dans la fibre  $G_{FO} = G_{LO} - G_1$ . On peut alors supposer l'existence d'un équilibre thermique entre le solide et la fibre au voisinage de l'interface S/L.

$$\lambda_F G_{FO} = \lambda_S \cdot G_{SO}^*$$

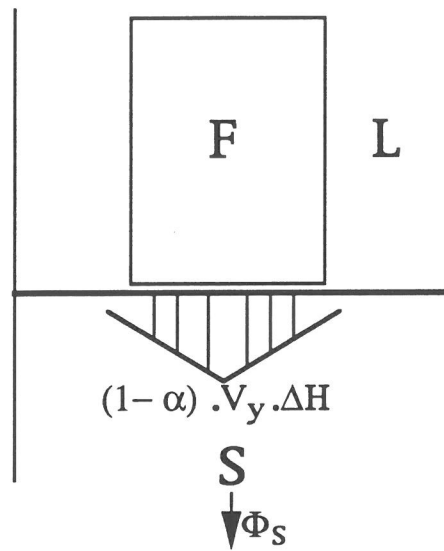
$$\Rightarrow \lambda_F (G_{LO} - G_1) = \lambda_S \cdot (G_{SO}^\circ + G_2) \quad (II.46)$$

$$\text{où } G_2 = \frac{\lambda_F}{\lambda_S} (G_{LO} - G_1) - G_{SO}^\circ$$

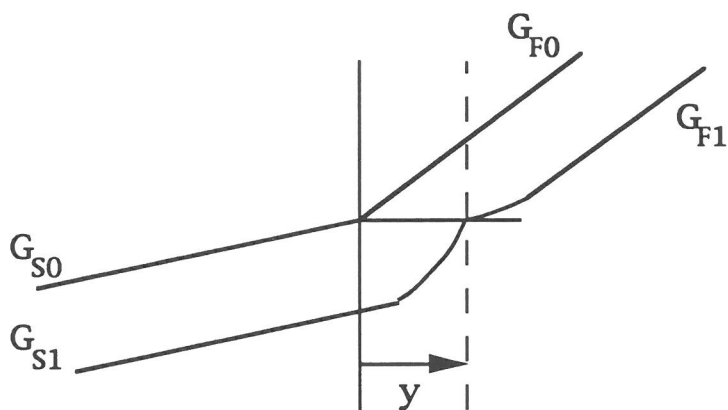
#### 2.3.1.2 - Phénomène de rejet:

Au cours du phénomène de rejet, tout déplacement de l'interface S/L conduit à une libération de chaleur latente  $Q_L$  due à la solidification d'une certaine quantité de liquide. Une fraction  $\alpha \cdot Q_L$  de cette énergie est alors transférée par la fibre sous forme d'un flux thermique  $\alpha \cdot V_y \cdot \Delta H$  s'opposant à celui acheminé par le renfort fibreux à l'interface S/L :  $\Phi_F = \lambda_F \cdot G_{FO}$  (Figure II.25). Un bilan des transferts de chaleur au sein de la fibre (relation II.47) met alors en évidence un abaissement du gradient thermique dans le renfort fibreux au voisinage du front de solidification ( $G_{F1} < G_{FO}$ ) (relation II.48).

$$\lambda_F G_{F1} = \lambda_F G_{FO} - \alpha \cdot \Delta H \cdot V_y \quad (II.47)$$



**Figure II.26:** Représentation des flux thermiques dans le solide au cours d'un phénomène de rejet.



**Figure II.27:** Allure des gradients thermiques dans la fibre et dans le solide à vitesse de solidification nulle et non nulle.

$$\Rightarrow G_{F1} = G_{F0} - \frac{\alpha \cdot \Delta H \cdot V_y}{\lambda_F} \quad (\text{II.48})$$

Par analogie, la fraction complémentaire de la chaleur de solidification  $(1-\alpha) \cdot Q_L$  est évacuée par le solide sous forme d'un flux thermique  $(1-\alpha) \cdot V_y \cdot \Delta H$  s'additionnant à celui dissipé dans le solide à vitesse de solidification nulle:  $\Phi_S = \lambda_S \cdot G_{S0}$  (Figure II.26). Conformément au bilan thermique défini par la relation (II.49), le gradient thermique dans le solide en contact avec la fibre augmente au voisinage du front de solidification pour atteindre la valeur  $G_{S1}$ .

$$\lambda_S \cdot G_{S1} = \lambda_S \cdot G_{S0}^* + (1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot V_y \quad (\text{II.49})$$

$$\Rightarrow G_{S1} = G_{S0}^* + \frac{(1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot V_y}{\lambda_S} \quad (\text{II.50})$$

Une représentation schématique des gradients thermiques dans la fibre et le solide est ainsi proposée sur la figure II.27, laquelle met en évidence à l'intérieur d'une zone transitoire, d'une part, une augmentation du gradient thermique dans le solide, d'autre part, une diminution du gradient thermique dans la fibre. De plus, par soucis de clarté, nous avons supposé que pour cette explication, les conductivités thermiques du liquide et du renfort fibreux sont égales, de sorte que les gradients thermiques au sein de la cellule élémentaire, à vitesse de solidification nulle, sont définis par:

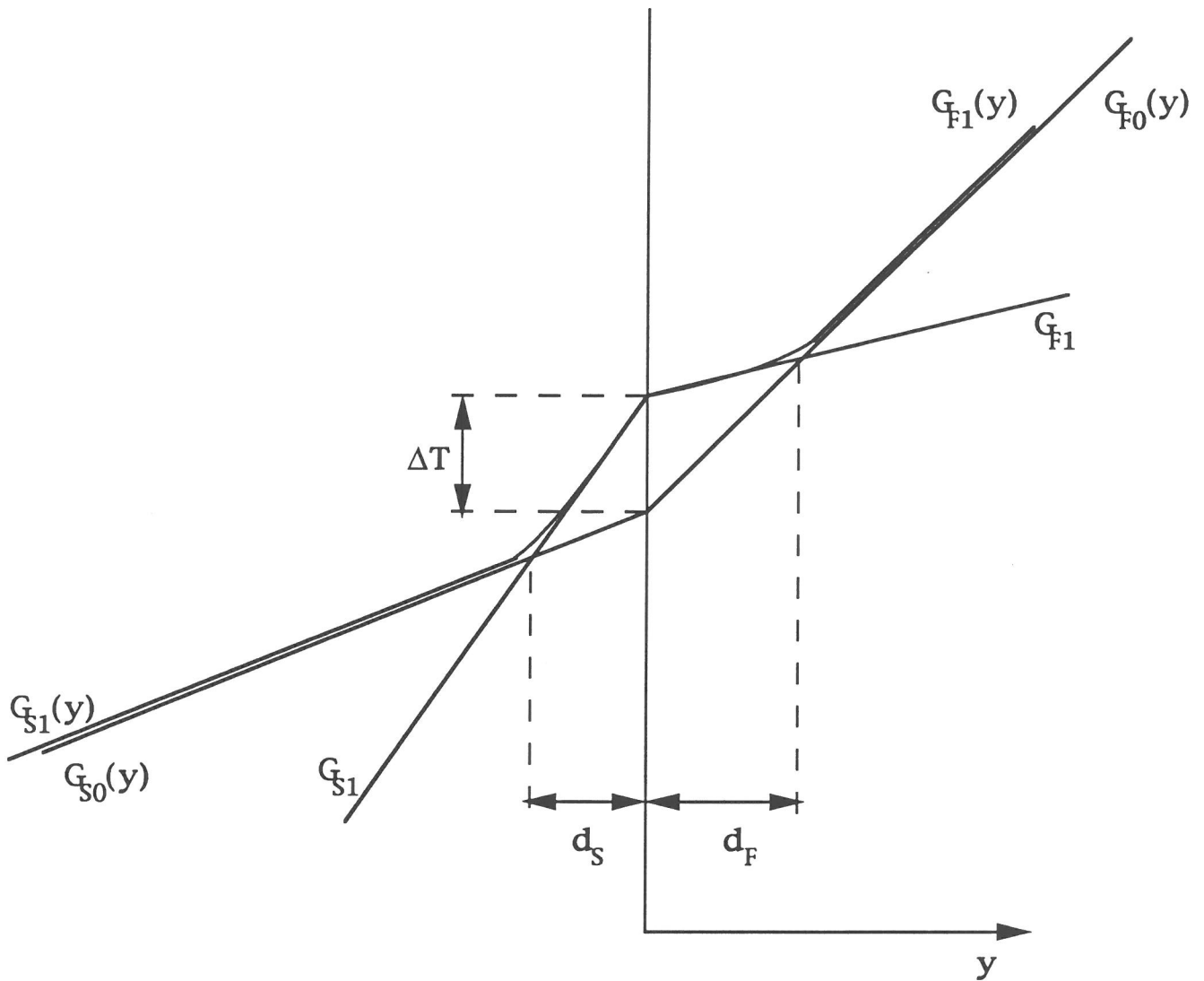
$$\begin{aligned} - G_{F0} &= G_{L0}^* \\ - G_{S0} &= G_{S0} \end{aligned}$$

De manière à faire ressortir les évolutions de gradients thermiques au voisinage de l'interface S/L, nous superposons les distributions de température dans le liquide et le solide loin de cette interface c'est-à-dire, lorsque les gradients thermiques sont supposés identiques. Suivant cette présentation, l'écart entre les profils de température apparaît au niveau du front de solidification alors qu'en fait la température de l'interface reste dans les deux cas la température d'équilibre de solidification (Figure II.28). La pente des courbes  $G_{F1}(y)$  et  $G_{S1}(y)$  au voisinage de l'interface S/L donne alors accès aux gradients thermiques dans la fibre et le solide au cours du phénomène de rejet:

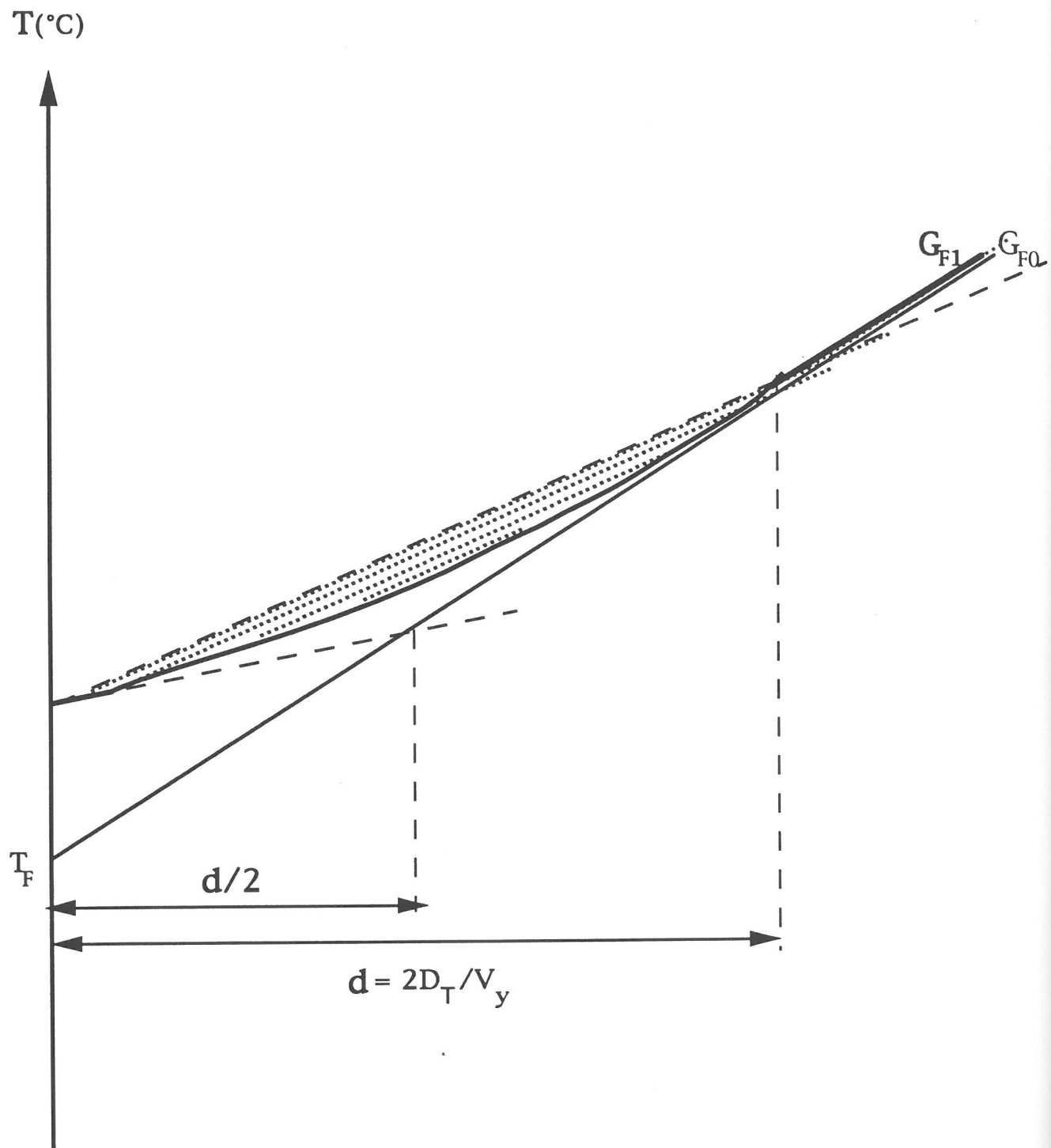
$$G_{F1} = \frac{G_{F0} \cdot d_F - \Delta T}{d_F} = G_{F0} - \frac{\Delta T}{d_F} \quad (\text{II.51})$$

$$G_{S1} = \frac{G_{S0} \cdot d_S + \Delta T}{d_S} = G_{S0} + \frac{\Delta T}{d_S} \quad (\text{II.52})$$

$d_F$  et  $d_S$  sont les distances caractéristiques des zones transitoires dans les liquide et solide ainsi que définies à la figure II.28.



**Figure II.28:** Distributions de température dans la fibre et le solide à vitesse de solidification nulle et non nulle.



**Figure II.29:** Profil de température à l'interface S/L résultant de la solidification dirigée d'un métal.



A l'aide des relations (II.48), (II.50), (II.51) et (II.52), il est alors possible d'estimer l'écart de température  $\Delta T$  caractéristique de la perturbation, lié au phénomène de solidification lorsqu'il y a rejet de la fibre:

$$\Delta T = \frac{\alpha \cdot \Delta H \cdot V_y \cdot d_F}{\lambda_F} = \frac{(1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot V_y \cdot d_S}{\lambda_S} \quad (\text{II.53})$$

Les épaisseurs  $d_F$  et  $d_S$  des couches limites de transfert de chaleur peuvent être estimées à l'aide de la vitesse  $V_y$  de progression de l'interface S/L et des diffusivités thermiques des fibre  $D_{TF}$  et solide  $D_{TS}$  (Figure II.29). Ainsi,  $d_F$  et  $d_S$  peuvent être exprimées comme suit:

$$d_F = \frac{2 \cdot D_{TF}}{V_y} = \frac{2 \cdot \lambda_F}{\rho_F \cdot C_F \cdot V_y} \quad (\text{II.54})$$

$$d_S = \frac{2 \cdot D_{TS}}{V_y} = \frac{2 \cdot \lambda_S}{\rho_S \cdot C_S \cdot V_y} \quad (\text{II.55})$$

La relation (II.53) devient alors :

$$\Delta T = \frac{2 \cdot \alpha \cdot \Delta H}{\rho_F \cdot C_F} = \frac{2 \cdot (1-\alpha) \cdot \Delta H}{\rho_S \cdot C_S} \quad (\text{II.56})$$

Il en résulte que  $\alpha$  peut être estimé à l'aide de la relation suivante:

$$\alpha = \frac{\rho_F \cdot C_F}{\rho_F \cdot C_F + \rho_S \cdot C_S} \quad (\text{II.57})$$

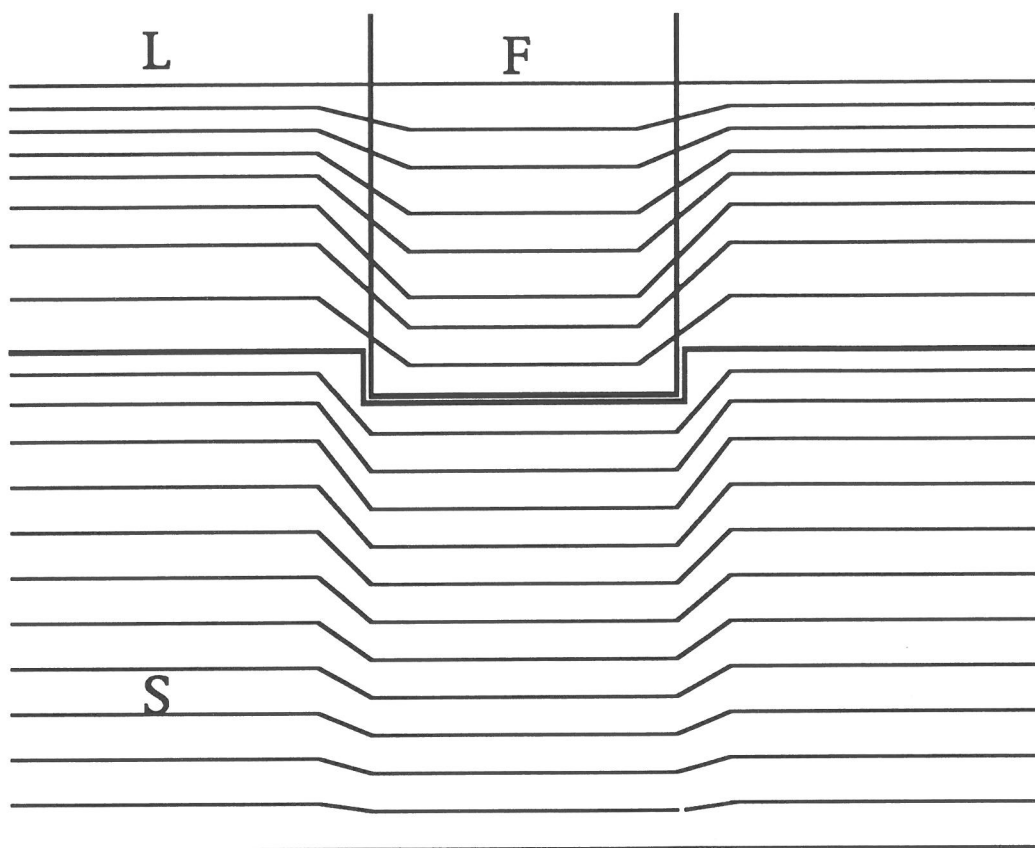
Les gradients thermiques dans la fibre  $G_{F1}$  et dans le solide  $G_{S1}$  au voisinage de l'interface S/L découlent alors des relations (II.51), (II.52), (II.53) et (II.57) :

$$G_{F1} = G_{F0} - \frac{\rho_F \cdot C_F \cdot V_y \cdot \Delta H}{\lambda_F (\rho_S \cdot C_S + \rho_F \cdot C_F)} \quad (\text{II.58})$$

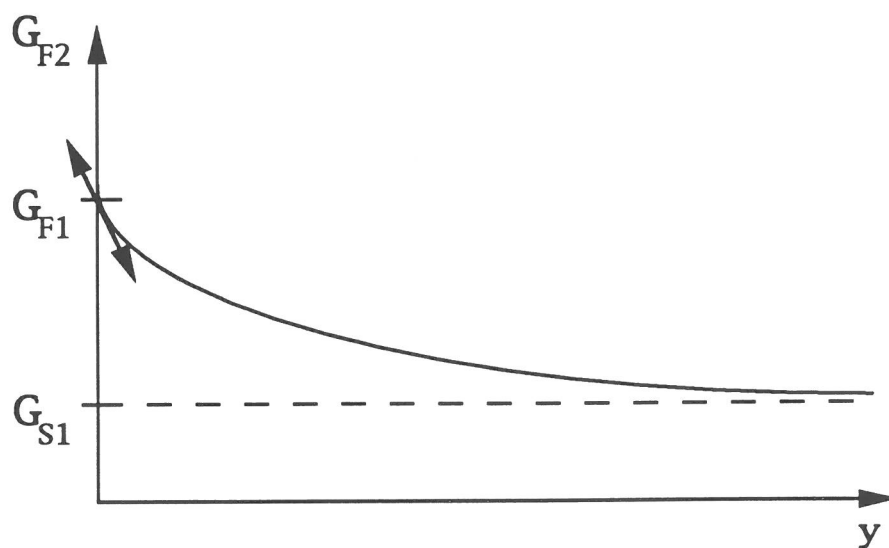
$$G_{S1} = G_{S0} + \frac{\rho_S \cdot C_S \cdot V_y \cdot \Delta H}{\lambda_S (\rho_S \cdot C_S + \rho_F \cdot C_F)} \quad (\text{II.59})$$

### 2.3.1.3 - phénomène d'absorption:

Au cours du phénomène d'absorption, le renfort fibreux est resté immobile si bien que le front de solidification, alors animé d'une vitesse nulle au sein de la cellule élémentaire, n'est le siège d'aucune libération de chaleur latente de solidification. Par conséquent, le gradient



**FIGURE II.30 :** Représentation schématique des isothermes dans le liquide et le solide concernant le phénomène d'absorption.



**Figure II.31:** Evolution du gradient thermique  $G_{F2}$  en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation.

thermique  $G_{S2}$  dans le solide en contact avec la fibre est proche de celui résultant de l'équilibre à vitesse de solidification nulle  $G_{S0}$  (Figure II.30).

A l'instant  $t = 0$ , la fibre au sein de laquelle règne un gradient thermique  $G_{F1}$  entre en contact avec le front de solidification. Dès lors, un échange de chaleur s'établit entre la fibre et le solide. Au fur et à mesure que le phénomène d'absorption se développe ( $t > 0$ ), l'amplitude  $y$  de la perturbation augmente si bien que la fibre est aussi, par l'intermédiaire de la surface d'échange latérale, en regard du solide environnant au sein duquel règne un gradient thermique  $G_{S1}$  résultant de l'équilibre à vitesse de solidification non nulle hors de la cellule élémentaire. Par conséquent, le gradient thermique  $G_{F2}$  évolue depuis  $G_{F1}$  au temps  $t=0$  jusqu'à  $G_{S1}$  lorsque la fibre est en cours d'absorption. L'évaluation du gradient thermique  $G_{F2}$  en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation peut être basée sur les indications suivantes:

- lorsque la fibre approche le front de solidification, la distribution de température au sein de la fibre est affectée par la présence du solide. L'évolution du gradient thermique  $G_{F2}$  au sein de la fibre vers celui du solide  $G_{S1}$  conduit donc inévitablement à une tangente oblique pour  $t=0$ , soit  $y=0$  (Figure II.31);
- lorsque le phénomène d'absorption est amorcé, le gradient thermique  $G_{F2}$  est proche de  $G_{S1}$ . Il existe donc une asymptote horizontale  $G_{F2}=G_{S1}$  pour  $t \gg 0$ , soit  $y \gg 0$ .

Parmi les fonctions mathématiques simples susceptibles de représenter ce phénomène physique, nous proposons une évolution exponentielle du gradient thermique  $G_{F2}$  en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation :

$$G_{F2} = G_{F1} \cdot \exp[-k \cdot y] + [1 - \exp(-k \cdot y)] \cdot G_{S1} \quad (II.60)$$

Le développement ultérieur du modèle prend en compte la première hypothèse de comportement. Au premier abord, le paramètre  $k$  intervenant dans les termes exponentiels est principalement fonction des conditions de transfert thermique entre la fibre et le solide. Par conséquent, toute relation entre ce paramètre et les caractéristiques thermiques de la fibre et du solide n'est pas à exclure. A titre d'exemple, étudions l'éventuelle relation entre ce paramètre et la capacité calorifique volumique  $\rho_F \cdot C_F$  de la fibre. De façon évidente, l'évolution du gradient thermique  $G_{F2}$  vers celui du solide  $G_{S1}$  est d'autant plus lente que la capacité calorifique volumique de la fibre est élevée. Par conséquent, le paramètre  $k$  évolue inversement à  $\rho_F \cdot C_F$  ( $k = f(1 / \rho_F \cdot C_F)$ ).

Après avoir défini les gradients thermiques, d'une part dans la fibre  $G_{F2}$ (absorption) et  $G_{F1}$ (rejet), d'autre part dans le solide  $G_{S2}$ (absorption) et  $G_{S1}$ (rejet), il est alors possible d'exprimer les variations  $\Delta G_{F1}^2 = G_{F2} - G_{F1}$  et  $\Delta G_{S1}^2 = G_{S2} - G_{S1}$ :

$$\begin{aligned}
\Delta G_{F1}^2 &= G_{F2} - G_{F1} \\
&= \left\{ G_{F1} \cdot \exp(-k \cdot y) + [1 - \exp(-k \cdot y)] \cdot G_{S1} \right\} - G_{F1} \\
&= \{ \exp[-k \cdot y] - 1 \} \cdot \{ G_{F1} - G_{S1} \}
\end{aligned} \tag{II.61}$$

$$\Delta G_{S1}^2 = G_{S2} - G_{S1} = G_{S0} - G_{S1} \tag{II.62}$$

Par l'intermédiaire des relations (II.40) et (II.41), la variation d'énergie de Gibbs de l'état 1 à l'état 2 peut alors être développée en utilisant les relations (II.61) et (II.62). Ne seront reportées ici que les relations finales découlant du calcul détaillé effectué en annexe 1.

### 2.3.2 - Expressions de la variation d'énergie de Gibbs $\Delta G_1^2$ pour chacun des cas étudiés:

#### 2.3.2.1 - Cas d'une fibre de conductivité thermique $\lambda_F \geq \lambda_L$ dont l'axe est perpendiculaire au front de solidification:

$$\begin{aligned}
\Delta G_{1-\perp}^2 &= y \cdot \left\{ -F_{F/R(\perp)} + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot \sigma_{SL} + \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} - G_1)}{V_y} \cdot \left( 1 - \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right) \right. \\
&\quad \left. - (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + \{ y \cdot \exp(-k \cdot y) \} \cdot \left\{ \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} - G_1)}{V_y} \cdot \left( \frac{\lambda_F}{\lambda_S} - 1 \right) \right. \\
&\quad \left. + \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F + (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\}
\end{aligned} \tag{II.63}$$

2.3.2.2 - Cas d'une fibre de conductivité thermique  $\lambda_F \leq \lambda_L$  dont l'axe est perpendiculaire au front de solidification:

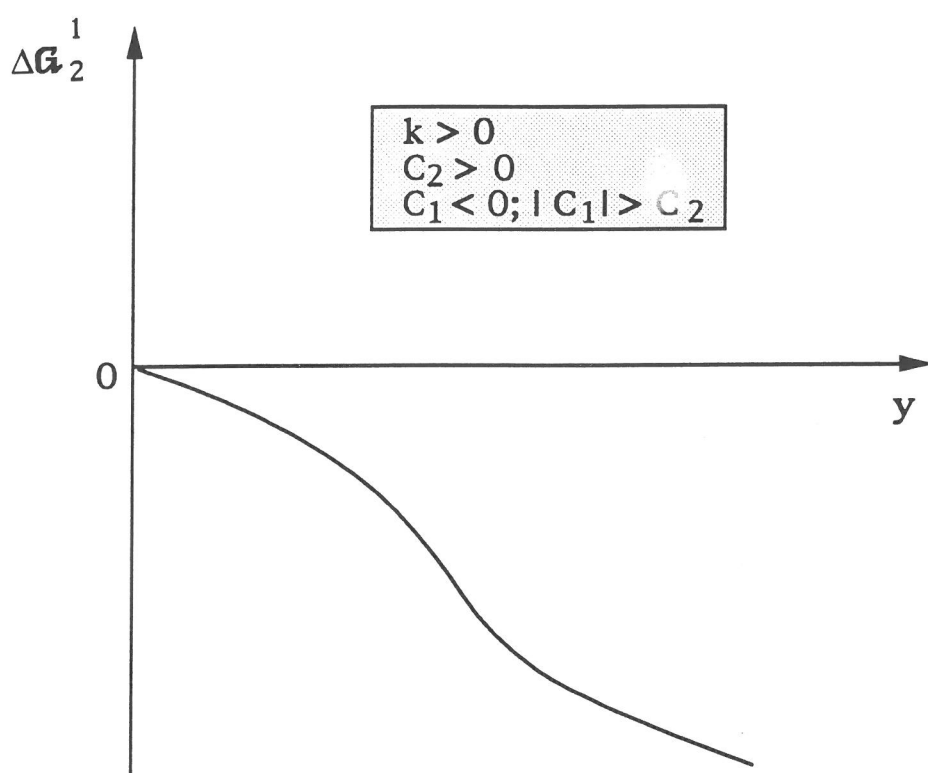
$$\begin{aligned} \Delta G_{1-\perp}^2 = y \cdot \left\{ -F_{F/R(\perp)} + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot \sigma_{SL} + \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} + G_1)}{V_y} \cdot \left(1 - \frac{\lambda_F}{\lambda_S}\right) \right. \\ \left. - (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + \{y \cdot \exp(-k \cdot y)\} \cdot \left\{ \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} + G_1)}{V_y} \cdot \left(\frac{\lambda_F}{\lambda_S} - 1\right) \right. \\ \left. + \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F + (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} \quad (II.64) \end{aligned}$$

2.3.2.3 - Cas d'une fibre de conductivité thermique  $\lambda_F \geq \lambda_L$  dont l'axe est parallèle au front de solidification:

$$\begin{aligned} \Delta G_{1-//}^2 = y \cdot \left\{ -F_{F/R(//)} + \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} + G_1)}{V_y} \cdot \left(1 - \frac{\lambda_F}{\lambda_S}\right) - 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} \\ + \{y \cdot \exp(-k \cdot y)\} \cdot \left\{ \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} - G_1)}{V_y} \cdot \left(\frac{\lambda_F}{\lambda_S} - 1\right) + 2 \cdot \alpha \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \right. \\ \left. + 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F \cdot y} \cdot \sigma_{SL} \quad (II.65) \end{aligned}$$

2.3.2.4 - Cas d'une fibre de conductivité thermique  $\lambda_F \leq \lambda_L$  dont l'axe est parallèle au front de solidification:

$$\begin{aligned} \Delta G_{1-//}^2 = y \cdot \left\{ -F_{F/R(//)} + \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} + G_1)}{V_y} \cdot \left(1 - \frac{\lambda_F}{\lambda_S}\right) - 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} \\ + \{y \cdot \exp(-k \cdot y)\} \cdot \left\{ \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} + G_1)}{V_y} \cdot \left(\frac{\lambda_F}{\lambda_S} - 1\right) + 2 \cdot \alpha \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \right. \\ \left. + 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F \cdot y} \cdot \sigma_{SL} \quad (II.66) \end{aligned}$$



**Figure II.32:** Evolution de la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation selon le cas n°1.

### 2.3.3 - Etude de la fonction $\Delta G_1^2 = f(y)$ pour le cas où l'axe du renfort fibreux est perpendiculaire à l'interface S/L.

Pour chacun des quatre cas étudiés ci-dessus, la complexité de l'expression mathématique liant la variation d'énergie de Gibbs à l'amplitude  $y$  de la perturbation nous impose d'étudier la fonction  $\Delta G = f(y)$  de façon à comprendre ses variations pour mieux corréler les résultats expérimentaux au modèle mathématique. Cette fonction est étudiée pour une amplitude de perturbation positive puisque nous avons supposé que:

- le phénomène de rejet s'accompagne d'une perturbation nulle ( $y=0$ );
- le phénomène d'absorption met en jeu une perturbation de taille non nulle et positive ( $y>0$ ).

De façon à faciliter l'étude, la relation mathématique liant la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  à l'amplitude  $y$  de la perturbation est simplifiée sous la forme suivante dans le cas où l'axe du renfort est perpendiculaire au front de solidification:

$$\Delta G_1^2 = C_1 \cdot y + C_2 \cdot y \cdot \exp(-k \cdot y) \quad (\text{II.67})$$

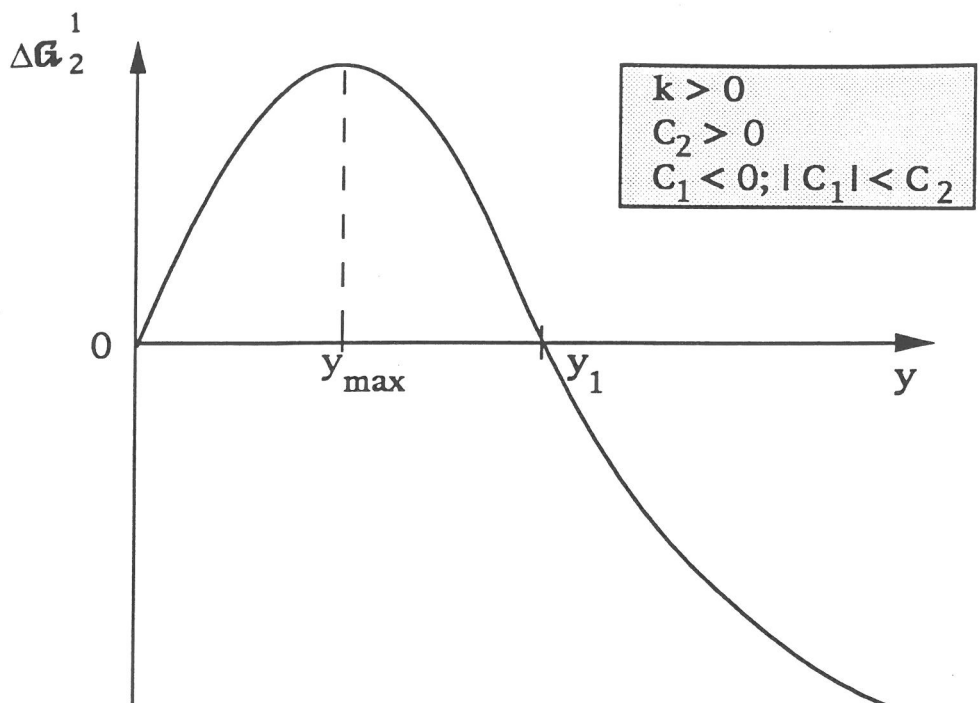
où  $C_1$  et  $C_2$  représentent des constantes dépendant, d'une part des conditions de solidification, d'autre part des caractéristiques physiques et géométriques de la matrice et du renfort fibreux.

L'étude complète de cette fonction paramétrée conduit à l'existence de très nombreux cas en fonction de la valeur de chacun des paramètres que sont  $k$ ,  $C_1$  et  $C_2$ . Il est en revanche possible d'en limiter le nombre en restreignant le domaine d'existence de certains d'entre eux. Par exemple, l'hypothèse conduisant à la relation (II.60) suppose une valeur positive du paramètre  $k$ . D'autre part, les caractéristiques physiques des divers systèmes aluminium/fibre ainsi que les conditions de solidification utilisées conduisent, de façon systématique, à une valeur positive du paramètre  $C_2$ . Dans ces conditions, seuls les quatre cas exposés ci-dessous peuvent être envisagés.

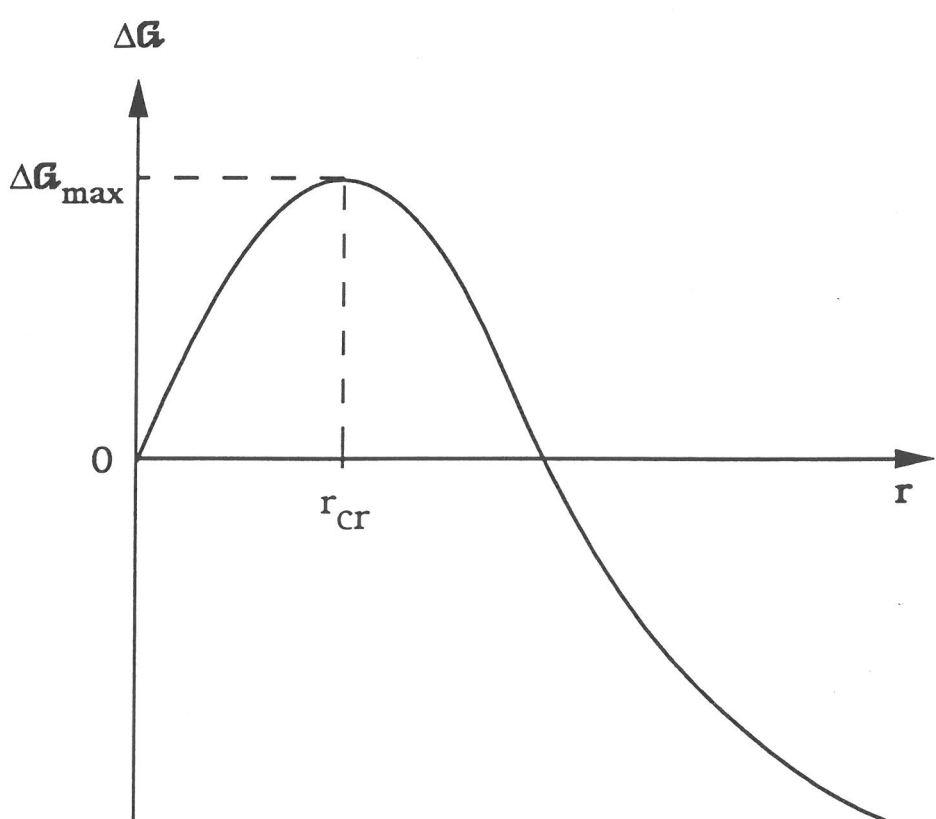
#### 2.3.3.1 - Cas n°1: $k > 0$ - $C_2 > 0$ - $C_1 < 0$ avec $|C_1| > C_2$ :

Nous considérons ici un système aluminium/fibre ayant subi une opération de solidification dirigée dans des conditions de vitesse et de gradient thermique conduisant à une valeur du paramètre  $C_1$  telle que:  $C_1 < 0$  avec  $|C_1| > C_2$ .

La variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  est présentée sur la figure II.32 en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation.



**Figure II.33:** Evolution de la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  en fonction de l'amplitude de la perturbation  $y$  selon le cas n°2.



**Figure II.34:** Evolution de la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  représentative du phénomène de germination en fonction de la taille  $r$  du germe de nucléation.



Dans ce cas, la variation d'énergie de Gibbs depuis l'état 1 vers l'état 2 est négative quelle que soit la taille  $y$  de la perturbation. Par conséquent, l'interaction d'un renfort fibreux avec une interface S/L s'accompagne, dans ce cas, d'une absorption de la fibre par le front de solidification.

### 2.3.3.2 - Cas n°2: $k > 0$ - $C_2 > 0$ - $C_1 < 0$ avec $|C_1| < C_2$ :

Nous considérons ici le cas pour lequel le paramètre  $C_1$  est tel que:  $C_1 < 0$  avec  $|C_1| < C_2$ .

La variation d'énergie de Gibbs depuis l'état 1 vers l'état 2 est représentée sur la figure II.33 en fonction de l'amplitude de la perturbation. L'évolution de la variable  $\Delta G$  avec la taille de la perturbation permet de distinguer deux zones distinctes:

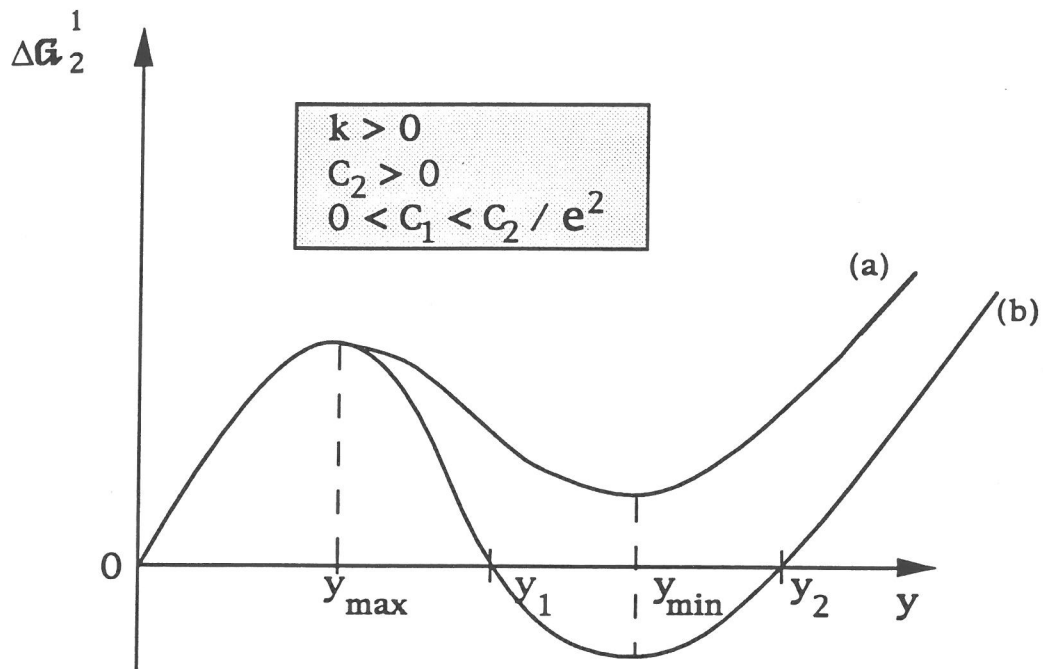
- pour une amplitude de perturbation  $y < y_1$ ,  $\Delta G$  est, d'une part positive, d'autre part croissante jusqu'à  $y_{\max}$  et décroissante pour  $y_1 > y > y_{\max}$ ;
- pour une perturbation d'amplitude  $y > y_1$ ,  $\Delta G$  est négative.

Cette évolution n'est pas sans rappeler celle concernant le graphe  $\Delta G=f(r)$  associé à la théorie de la germination homogène (Figure II.34). On considère alors qu'un germe de nucléation de rayon  $r$  ne peut croître que s'il atteint un rayon critique  $r_{cr}$ , rayon pour lequel la variation d'énergie de Gibbs associée au phénomène de germination est maximum. En d'autre terme, la croissance d'un nucleus nécessite le franchissement d'une barrière de potentiel d'amplitude  $\Delta G_{\max}$ . Dans le cas où cette barrière n'est pas franchie, le germe de nucléation ne peut croître et se dissout au sein de la phase liquide mère.

Par analogie, nous disons que le phénomène d'absorption se développe dès lors que l'amplitude  $y$  de la perturbation est supérieure ou égale à  $y_{\max}$ . Dans le cas contraire, l'interaction du renfort fibreux avec une interface S/L conduit systématiquement au phénomène de rejet.

En guise de synthèse, tout système aluminium/fibre ayant subi une opération de solidification dirigée, et caractérisé par les paramètres  $k$ ,  $C_1$  et  $C_2$  tels qu'exposés au début du cas n°2, pourra évoluer vers une des deux situations suivantes:

- un phénomène de rejet si l'amplitude de la perturbation est inférieure à une perturbation critique  $y_{\max}$ ;
- un phénomène d'absorption dès lors que l'amplitude de la perturbation est supérieure ou égale à  $y_{\max}$ .



**Figure II.35:** Evolution de la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation selon le cas n°3.

### 2.3.3.3 - Cas n°3: $k > 0$ - $C_2 > 0$ - $0 < C_1 < C_2/e^2$ :

La variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  représentée sur la figure II.35 en fonction de l'amplitude de la perturbation, pour le cas où  $0 < C_1 < C_2/e^2$ , permet de distinguer deux courbes en fonction de la position du second extremum de la fonction  $\Delta G=f(y)$ :

a) Le second extremum apparait pour  $\Delta G > 0$  (courbe a).

Quelle que soit l'amplitude  $y$  de la perturbation, la variation d'énergie de Gibbs est positive. Dans ces conditions, le phénomène le plus stable est le rejet des fibres par le front de solidification.

b) Le second extremum apparait pour  $\Delta G < 0$  (courbe b).

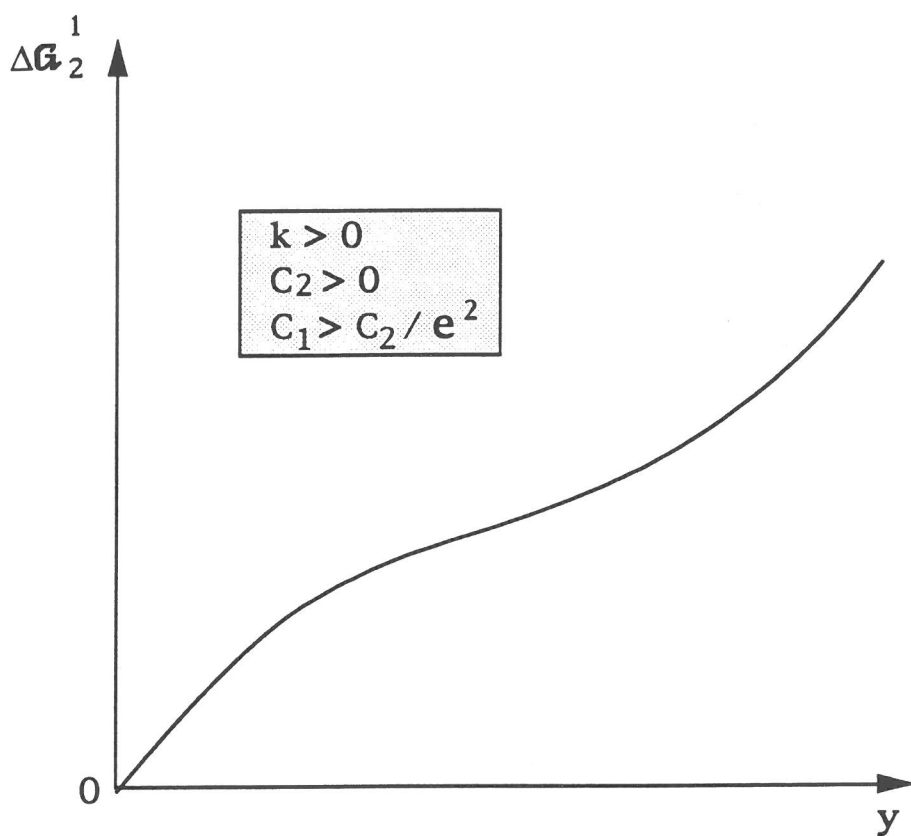
Afin de commenter plus aisément l'allure de la courbe b, il apparait nécessaire de distinguer trois domaines:

1) pour une amplitude  $y$  de perturbation inférieure à  $y_{\max}$ , la variation d'énergie de Gibbs est positive et croissante. Par conséquent, le seul phénomène susceptible de se développer au cours d'une expérience de solidification dirigée est le rejet du renfort par l'interface S/L;

2) lorsque  $y_{\min} > y > y_{\max}$ , la variation d'énergie de Gibbs est d'une part décroissante, d'autre part positive pour  $y_1 > y > y_{\max}$  et négative pour  $y_{\min} > y > y_1$ . Cette portion de courbe étant analogue à celle observée dans le cas n°2 lorsque  $y > y_{\max}$ , il est raisonnable de penser que le phénomène d'absorption est susceptible de se développer au sein de ce domaine;

3) lorsque  $y > y_{\min}$ , la variation d'énergie de Gibbs est d'une part croissante, d'autre part négative pour  $y_2 > y > y_{\min}$  et positive pour  $y > y_2$ . Ce domaine présente une analogie inverse à celui du cas n°2 lorsque  $y > y_{\max}$ . En effet, dans le cas qui nous intéresse ici, la courbe est croissante vers les valeurs positives de  $\Delta G$  alors qu'elle est, dans le cas n°2, positive et décroissante vers les valeurs négatives de  $\Delta G$ . Ayant prédit un phénomène d'absorption dans le cas n°2 lorsque  $y > y_{\max}$ , on ne peut qu'envisager un phénomène de rejet dans le cas n°3 lorsque  $y > y_{\min}$ .

Il existe donc une gamme de perturbation ( $y_{\max} < y < y_{\min}$ ) à l'intérieur de laquelle le phénomène d'absorption peut se développer et à l'extérieur de laquelle le phénomène de rejet devient le plus stable.



**Figure II.36:** Evolution de la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation selon le cas n°4.

#### 2.3.3.4 - Cas n°4: $k > 0$ - $C_2 > 0$ - $C_1 > C_2/e^2$ :

Ce dernier cas permet d'expliquer le comportement d'un renfort fibreux au voisinage d'un front de solidification plan lorsque le paramètre  $C_1$  est tel que  $C_1 > C_2/e^2$ .

Dans de telles conditions, l'évolution de la variation d'énergie de Gibbs avec l'amplitude  $y$  de la perturbation est représentée sur la figure II.36.

Au premier abord, quelle que soit l'amplitude de la perturbation, la variation d'énergie de Gibbs depuis l'état 1 vers l'état 2 demeure positive. En conséquence, le phénomène susceptible de se développer au cours d'un processus de solidification dirigée est le rejet du renfort fibreux par le front de solidification.

En guise de synthèse, une représentation des quatres cas en fonction de l'ordre de grandeur du paramètre  $C_1$  est proposée sur la figure II.37. Dès lors, quelques remarques peuvent être faites:

- partant du cas n°4, le phénomène d'absorption a d'autant plus tendance à se manifester que le paramètre  $C_1$  diminue;
- lorsque les conditions de solidification et les grandeurs physiques caractéristiques des fibres étudiées sont telles que le paramètre  $C_1$  est négatif, le phénomène d'absorption a de fortes chances de se développer.

Cette seconde remarque est vérifiée lorsque:

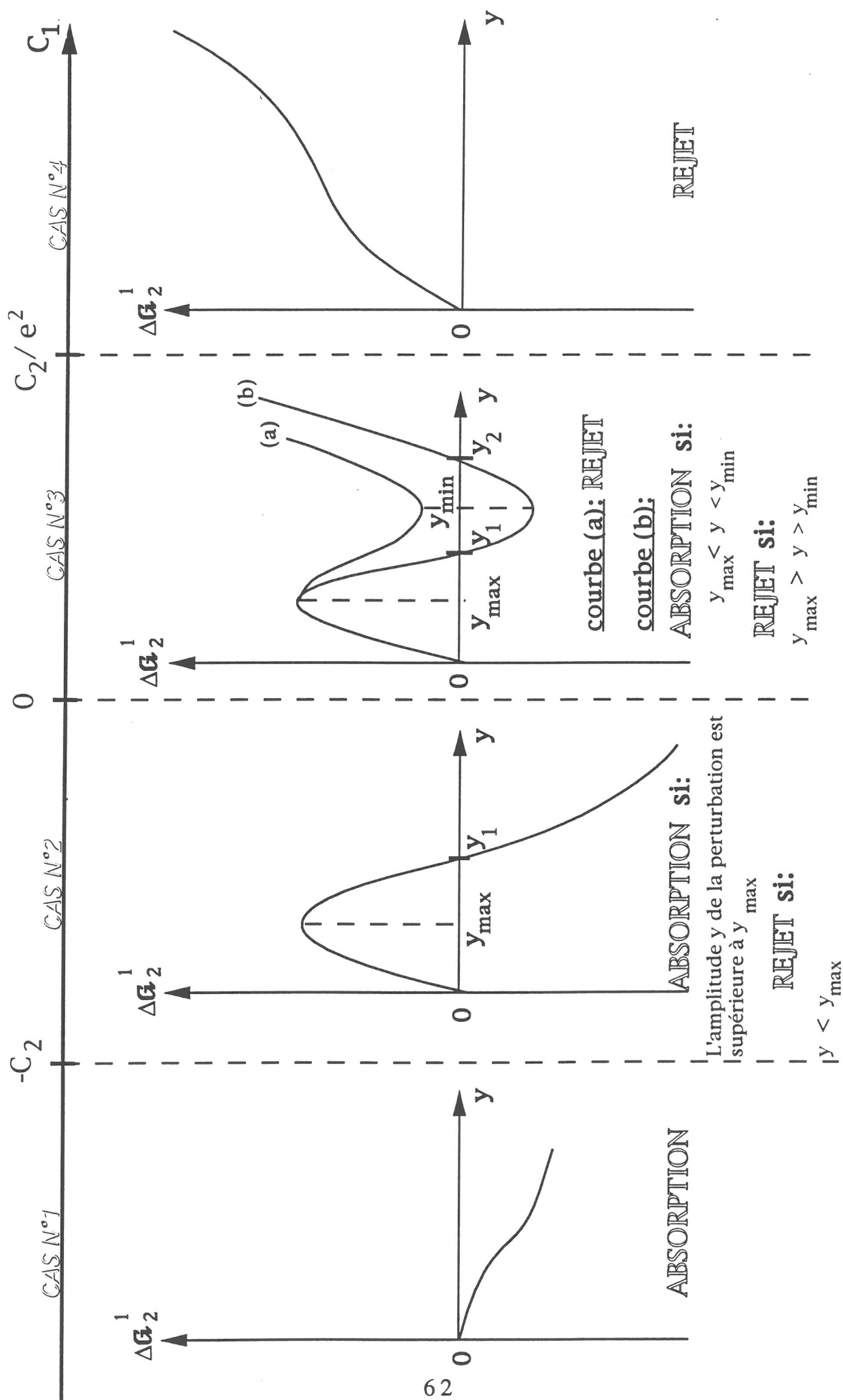
$$\frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_L - G_1)}{V_y} \cdot \left(1 - \frac{\lambda_F}{\lambda_S}\right) - (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot \sigma_{SL} - F_{F/R(\perp)} < 0 \quad (\text{II.68})$$

Les deux derniers termes de la relation (II.68) étant négligeables, celle-ci peut être simplifiée comme suit:

$$\begin{aligned} & \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_L - G_1)}{V_y} \cdot \left(1 - \frac{\lambda_F}{\lambda_S}\right) - (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} < 0 \\ \Rightarrow & \frac{(G_L - G_1)}{\rho_S \cdot C_S \cdot V_y} \cdot \left(1 - \frac{\lambda_F}{\lambda_S}\right) \cdot (\rho_F \cdot C_F + \rho_S \cdot C_S) < \frac{\Delta H}{\lambda_S} \end{aligned} \quad (\text{II.69})$$

Le phénomène d'absorption se développe donc d'autant plus facilement que:

- le gradient thermique  $G_L$  dans le liquide au voisinage du front de solidification est faible;
- la vitesse  $V_y$  de solidification est élevée;



**Figure II.37:** Synthèse des divers cas résultant de l'interaction d'un renfort fibreux court avec une interface solide/liquide.

- la conductivité thermique  $\lambda_F$  de la fibre est élevée;
- la capacité calorifique volumique  $\rho_F.C_F$  de la fibre est faible.

La relation (II.69) est également valable lorsque l'on considère des valeurs élevées du paramètre  $k$ . En effet, l'expression  $y \cdot \exp(-k.y)$  devient alors faible devant  $y$  si bien que la variation d'énergie de Gibbs se résume à l'expression suivante:

$$\Delta G_1^2 = C_1 \cdot y \quad (II.70)$$

Dés lors que le paramètre  $k$  est élevé, le phénomène d'absorption se développe pour des valeurs négatives du paramètre  $C_1$ .

A l'opposé, pour des valeurs faibles du paramètre  $k$ , l'expression  $y \cdot \exp(-k.y)$  est voisine de  $y$ . La variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  s'exprime alors comme suit:

$$\Delta G_1^2 = \left( \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot \sigma_{SL} - F_{F/R(\perp)} \right) \cdot y \quad (II.71)$$

Dans la mesure où les deux derniers termes sont minoritaires, le seul phénomène susceptible de se développer est le rejet du renfort par le front de solidification puisque  $\alpha \cdot \Delta H \cdot S_F$  est toujours positif.

2.3.4 - Etude de la fonction  $\Delta G_1^2 = f(y)$  pour le cas où l'axe du renfort fibreux est parallèle au front de solidification.

Dans le cas où l'axe du renfort fibreux est parallèle au front de solidification, la relation mathématique liant la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  à l'amplitude  $y$  de la perturbation ne peut plus être simplifiée sous la forme définie par la relation II.67, mais sous une forme plus complexe proposée dans la relation suivante:

$$\Delta G_1^2 = C_1 \cdot y + C_2 \cdot y \cdot \exp(-k \cdot y) + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}} \quad (II.72)$$

La complexité de cette relation ne permet pas de réaliser l'étude de la fonction  $\Delta G=f(y)$  et par conséquent, il n'est pas possible d'aboutir aux différents cas permettant d'expliquer le comportement d'un renfort fibreux au voisinage d'un front de solidification plan.

## CONCLUSION:

Nous avons essayé de développer, dans ce chapitre, un modèle de comportement basé sur des hypothèses de départ simples. En premier lieu, nous avons décidé, à partir d'une situation de référence (état 0), d'étudier l'évolution du comportement du renfort fibreux soit vers un phénomène de rejet (état 1), soit vers un phénomène d'absorption (état 2). A titre d'hypothèse, nous avons supposé que quelle que soit l'évolution du système vers l'une de ces deux situations, une fine pellicule de liquide coexiste entre le front de solidification et le renfort fibreux. Considérant (i) les échanges thermiques au niveau de l'interface S/L, (ii) les forces appliquées au niveau du front de solidification et (iii) l'existence d'efforts complémentaires pouvant avoir une influence sur le comportement étudié, nous avons développé un modèle représentant la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  depuis l'état 1 vers l'état 2 en fonction (i) des caractéristiques physiques du renfort et de la matrice, (ii) des conditions de solidification, (iii) de l'amplitude  $y$  de la perturbation et (iiii) de la position du renfort par rapport au front de solidification. Enfin, une étude de la fonction  $\Delta G = f(y)$  nous a permis de mettre en évidence quatre cas suivant les conditions de solidification et les caractéristiques physiques de la matrice et du renfort, représentant quatre types de comportement potentiellement observables.

Face aux difficultés liées à la modélisation de ces phénomènes tenant compte de nombreuses hypothèses, cette étude n'a pas pour but de prédire le comportement exact d'un renfort au niveau du front de solidification, mais plutôt de dégager des tendances permettant de comprendre l'influence des conditions de solidification et des caractéristiques physiques du renfort. Bien évidemment, il est toujours possible de discuter le choix des hypothèses dans le but de les peaufiner ou de les remplacer. Dans cette optique, l'hypothèse de départ selon laquelle une couche de liquide coexisterait entre l'interface S/L et le renfort au cours des deux phénomènes d'absorption et de rejet pourrait faire l'objet d'une modification. En effet, on pourrait concevoir, lors du phénomène d'absorption, la création d'une interface solide/solide entre le renfort et le front de solidification. Cette hypothèse conduirait à prendre en compte les énergies interfaciales fibre/matrice liquide, fibre/matrice solide et compliquerait un peu plus le modèle en introduisant deux paramètres supplémentaires. Finalement, l'optimisation des hypothèses pourrait s'inscrire dans la suite logique de ce premier travail de modélisation.



## REFERENCES

- 1- W. KURZ, D.J. FISHER, "Fundamentals of solidification", Trans tech publications, Switzerland, 1986.
- 2- I. MINKOFF, "Solidification and cast microstructures", John Wiley, New York, 1986.
- 3- M.C. FLEMINGS, "Solidification processing", Mac Graw Hill series in material science and engineering, New York, 1974.
- 4- B. CHALMERS, "Métallurgie physique", Dunod, Paris, 1963.
- 5- F. DURAND, R. HAMAR, "Transferts de chaleur et de masse dans les procédés de solidification", Ecole d'été sur la solidification des alliages, Editions de physique, Paris, 1988.
- 6- N. EUSTATHOPOULOS, D. CAMEL, J.J. FAVIER, "La solidification à l'échelle de l'interface", Ecole d'été sur la solidification des alliages, 2<sup>ème</sup> partie, Editions de physique, Paris, 1988.
- 7- R. BYRON BIRD, W.E. STEWART, E.N. LIGHTFOOT, "Transport phenomena", John Wiley, New York, 1960.
- 8- E. GUYON, J.P. HULIN, L. PETIT, "Hydrodynamique physique", Interéditions, 1991.
- 9- E.A. BRUN, A. MARTINOT-LAGARDE, J. MATHIEU, "Mécanique des fluides", Tome III, Dunod, Paris, 1970.
- 10- R. COMOLET, "Mécanique expérimentale des fluides", Tome II, Masson, 1982.
- 11- G.K. BATCHELOR, "An introduction to fluid dynamics", Cambridge University Press, 1967.
- 12- A. FORTIER, "Mécanique des fluides", Techniques de l'ingénieur, vol AF4, A701.13-17.
- 13- Handbook of chemistry
- 14- D.R. UHLMANN, B. CHALMERS, K.A. JACKSON, "Interaction between particles and a solid/liquid interface", J. Appl. Phys., 35, 10, 1964, 2986-2993.
- 15- K. PETTERSEN, "Solidification of magnesium alloy AZ 91", Thèse de l'Université de TRONDHEIM 1, Norvège, 1988.
- 16- Compte rendu de fin d'étude, "Composites à matrice aluminium et fibres courtes", C.T.D, Centre de recherche Péchiney, 1987.

# CHAPITRE III

## PARTIE EXPERIMENTALE

### INTRODUCTION

#### 3.1 - ELABORATION:

3.1.1 - Choix de la matrice:

3.1.2 - Choix et préparation des renforts fibreux:

3.1.3 - Elaboration et mise en forme des matériaux:

3.1.4 - Caractérisation des matériaux:

#### 3.2 - TRAITEMENT DE SOLIDIFICATION DIRIGEE:

3.2.1 - Appareillage utilisé:

3.2.2 - Mode opératoire:

3.2.3 - Plan des manipulations:

#### 3.3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX:

3.3.1 - Système A5/SiC(Nicalon)-(Fig III.17, III.18):

3.3.2 - Système A5/alumine(FP)-(Figure III.19):

3.3.3 - Système A5/carbone(P100)-(Figure III.20):

3.3.4 - Système A5/SiC( $\sigma$ )-(Figure III.21):

3.3.5 - Système A5/Bore(W)-(Figure III.22):

#### 3.4 - INTERPRETATION DES RESULTATS:

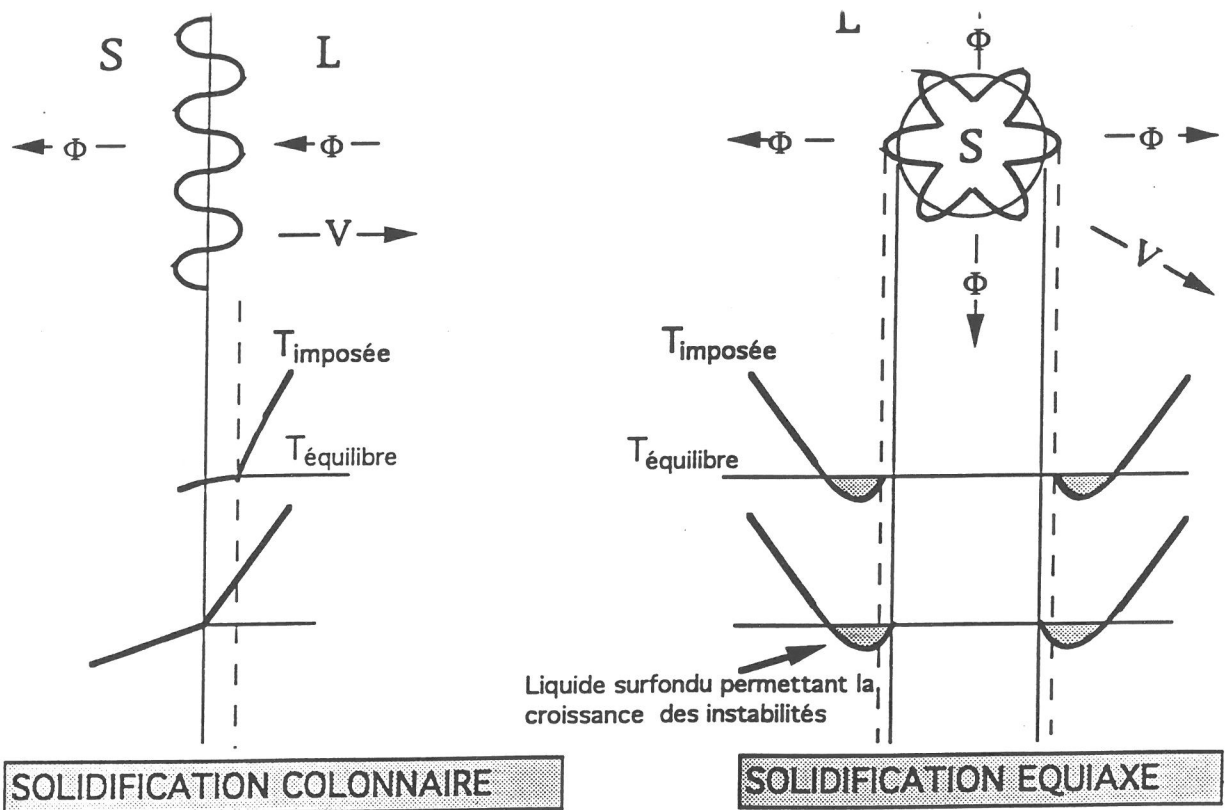
3.4.1 - Influence des conditions de solidification:

3.4.2 - Influence des caractéristiques physiques et géométriques du renfort:

3.4.3 - Influence de la fraction volumique  $V_F$  de renfort fibreux ou filamentaire:

### CONCLUSION

### REFERENCES



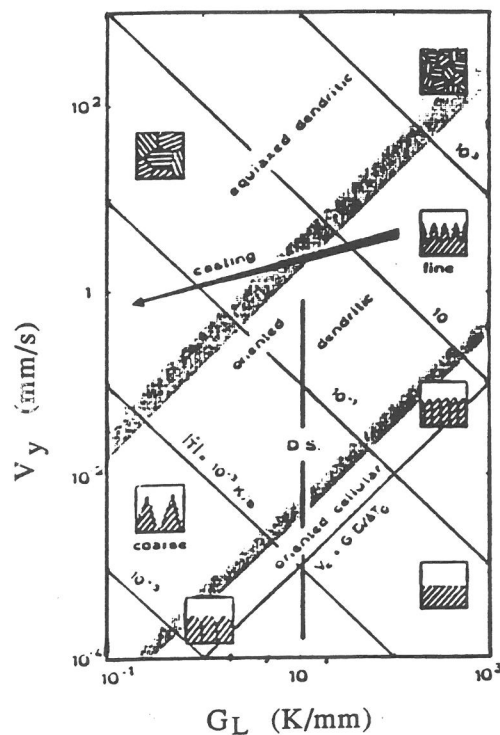
**Figure 1:** Solidification colonnaire et équiaxe d'un métal pur d'après [1].

$-\Phi \rightarrow$  : direction du transfert de chaleur

$-V \rightarrow$  : vitesse de solidification

$T_{\text{équilibre}}$  : température d'équilibre de solidification

$T_{\text{imposée}}$  : température imposée par le flux de chaleur



**Figure 2:** Représentation schématique des morphologies de croissance d'un alliage d'aluminium hypoeutectique. Ce diagramme résume les diverses microstructures observables pour un alliage dont l'intervalle de solidification est de 50 K, lorsque le gradient thermique à l'interface S/L et la vitesse de solidification sont modifiées [1],[17].

## INTRODUCTION

Nous nous proposons dans cette troisième partie intitulée partie expérimentale, de confronter les prédictions du modèle développé précédemment aux résultats expérimentaux.

Le premier chapitre consacré à l'élaboration des matériaux composites à renforts courts, développe successivement les motivations de notre choix en ce qui concerne la matrice, les renforts fibreux ou filamenteux, les procédés d'élaboration et la caractérisation des matériaux.

Le second chapitre aborde le traitement de solidification dirigée des matériaux élaborés en décrivant l'appareillage et le mode opératoire utilisé. Un plan des manipulations effectuées clôt cette seconde partie.

Les résultats expérimentaux sont proposés dans le troisième chapitre, lequel décrit le comportement (i) des fibres de carbure de silicium(Nic), d'alumine (FP) et de carbone(P100), (ii) des filaments de carbure de silicium( $\sigma$ ) et de bore(W) à l'interface S/L au cours de l'expérience de solidification dirigée.

Enfin, le quatrième chapitre consacré à l'interprétation des résultats nous permet de mettre successivement en évidence l'influence (i) des conditions de solidification, (ii) des caractéristiques physiques ou géométriques du renfort et (iii) de la fraction volumique de renfort à l'interface S/L.

### 3.1 - ELABORATION:

#### 3.1.1 - Choix de la matrice:

##### 3.1.1.1 - Interaction d'un renfort fibreux court avec un front de solidification plan:

L'étude de l'absorption ou du rejet de fibres courtes par une interface S/L plane implique l'utilisation d'une matrice métallique susceptible de se solidifier dans des conditions de grande stabilité. Il est possible de satisfaire ces exigences, soit lors de la solidification colonnaire (dirigée ou non) de métaux purs (Figure III.1), soit par solidification dirigée d'alliages métalliques dans un four Bridgman [1].

La seconde possibilité est cependant limitée par les conditions de solidification permettant la stabilité de l'interface S/L à savoir, un gradient thermique élevé dans le liquide et une faible vitesse du front de solidification(Figure III.2). En conséquence, ces deux paramètres doivent être maintenus constants et leur influence à l'égard du phénomène étudié ne peut alors être mise en évidence.

Au contraire, la première possibilité semble beaucoup plus intéressante puisque la stabilité de l'interface S/L est, dans ce cas, indépendante des conditions de solidification. Toute étude du phénomène d'absorption ou de rejet en fonction de ces deux paramètres peut alors être envisagée par solidification dirigée de type Bridgman.

Nature du renfort fibreux	Diamètre $d_F$ ( $\mu\text{m}$ )	Conductivité thermique $\lambda_F$ (W/m.K)	Masse volumique $\rho_F$ (kg/m <sup>3</sup> )	Capacité calorifique massique $C_F$ (J/kg.K)	Capacité calorifique volumique $\rho_F C_F$ (J/m <sup>3</sup> .K)
SiC (Nicalon)	12 [1]	3.25 [1]	2550 [1]	1224 [1]*	3.1 .10 <sup>6</sup>
Carbone (P100)	10 [1]	520 [1]	2000 [1]	925 [1]**	1.85 .10 <sup>6</sup>
Alumine (FP)	20 [1]	26 [1]	3900 [1]	850 [1]**	3.3 .10 <sup>6</sup>
SiC ( $\sigma$ )	100 [1]	19 [2]	3400 [1]	610 [2]	2.1 .10 <sup>6</sup>
Bore	140 [1]	29 [2]	2460 [1]	959 [2]	2.4 .10 <sup>6</sup>
In var	120 [1]	21 [1]	8000 [1]	440 [1]**	3.5 .10 <sup>6</sup>
SiC (Tokai)	0.1 [1]	19 [1]	3200 [1]	700 [1]*	2.2 .10 <sup>6</sup>

**Tableau III.1:** Caractéristiques physiques et géométriques des renforts fibreux choisis

[1]: Documentation technique (\*: à 660°C; \*\*: à 21°C)

[2]: Calculé en annexe 2

La matrice métallique choisie sera donc l'aluminium quasi-pur commercialisé sous la nomenclature A5 et caractérisé par une pureté voisine de 99,5 %. Parmi les éléments d'alliage majoritaires, citons le fer, le silicium et le cuivre dont la somme des concentrations massiques respectives est, selon la norme, inférieure à 0,55 % [2].

### 3.1.2 - Choix et préparation des renforts fibreux:

#### 3.1.2.1 - Choix des renforts fibreux:

De manière à faire ressortir l'influence des caractéristiques physiques ou géométriques du renfort fibreux à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet, il s'avère primordial de définir une palette de fibres (parmi celles couramment commercialisées) nous permettant de dégager l'influence de chacune des grandeurs géométriques et physiques que sont par exemple, le rayon  $r_F$  ou la conductivité thermique  $\lambda_F$  de la fibre.

D'autre part, cette approche se doit également de prendre en compte la faisabilité du matériau composite à partir des fibres courtes sélectionnées. La méthode la plus utilisée pour mettre en oeuvre ce type de matériau consiste à incorporer les fibres courtes au sein d'un bain d'aluminium à l'état liquide (métal pur) ou semi-solide (alliage) fortement brassé. Cette technique, que nous expliciterons plus en détail par la suite, peut cependant être employée uniquement lorsque le renfort fibreux accepte, pour des raisons encore mal connues, de se mélanger intimement avec la matrice métallique liquide (ou semi-solide) choisie.

Face aux difficultés associées au choix des divers renforts fibreux, nous prendrons comme référence la fibre de carbure de silicium Nicalon dont la compatibilité avec l'alliage d'aluminium de type AS7G06 permet l'élaboration d'un matériau composite. De façon évidente, nous espérons que son comportement à l'égard de l'aluminium quasi-pur A5 en sera de même.

##### *3.1.2.1.1 - Influence de la conductivité thermique de la fibre:*

Conformément au tableau III.1, la fibre de carbure de silicium Nicalon est un isolant thermique de faible diamètre et de masse volumique proche de l'aluminium quasi-pur à l'état liquide ( $\rho_L = 2370 \text{ kg/m}^3$ ). Dès lors, l'influence du paramètre "conductivité thermique" peut être mise en évidence en choisissant un renfort fibreux plutôt conducteur ayant, par ailleurs, des caractéristiques physiques et géométriques proches. L'emploi d'une fibre de carbone Thornel P100 de conductivité thermique élevée remplit assez bien le cahier des charges à l'image des caractéristiques physiques mentionnées dans le tableau III.1.

Renfort n°1	Renfort n°2	Grandeurs physiques caractéristiques
SiC (Nicalon)	Bore	$r_F, \lambda_F$
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (FP)	Bore	$r_F, \rho_F$
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (FP)	SiC ( $\sigma$ )	$r_F, C_F, \rho_F$

**Tableau III.2:** Couples de renforts fibreux permettant de mettre en évidence l'influence couplée du diamètre et d'autres caractéristiques physiques de fibres sur le phénomène d'absorption ou de rejet.

### 3.1.2.1.2 - Influence du diamètre de la fibre:

Un raisonnement similaire concernant l'influence du diamètre de la fibre nous permet de proposer trois types de renforts fibreux :

- des whiskers de SiC submicroniques ;
- des fibres de taille supérieure à la fibre Nicalon ;
- des filaments de gros diamètre ( $r_F \geq 50\mu\text{m}$ ).

La première possibilité ne peut cependant être retenue pour diverses raisons liées d'une part, à la floculation de ce type de renfort fibreux, d'autre part, à la faible taille des whiskers, responsable de l'inefficacité de la méthode d'élaboration citée précédemment (rhéomoulage) pour des fibres submicroniques.

Suite à de multiples essais d'élaboration de matériaux à partir de divers renforts fibreux de taille supérieure au renfort Nicalon, seule la fibre d'alumine FP, dont les caractéristiques physiques et géométriques sont reportées dans le tableau III.1, a fait l'objet de résultats concluants.

Enfin, parmi les filaments les plus utilisés, particulièrement dans le domaine des matériaux composites à matrice titane ou intermétallique, citons :

- le filament de carbure de silicium ( $\sigma$ ) préparé par CVD sur un fil de tungstène de  $15\mu\text{m}$  [3];
- le filament de carbure de silicium (SCS6) préparé par CVD sur une fibre de carbone de  $40\mu\text{m}$  et présentant une couche superficielle d'un mélange carbone + SiC [4];
- le filament de Bore préparé par CVD à partir d'un fil de tungstène de  $15\mu\text{m}$  [5].

A l'exception du renfort filamentaire de type SCS6, les deux autres filaments cités précédemment ont permis l'élaboration d'un matériau composite à fibres courtes.

L'étude de l'absorption ou du rejet en fonction du diamètre du renfort s'avère cependant beaucoup plus complexe que celle proposée pour la conductivité thermique. En effet, la comparaison des caractéristiques physiques et géométriques des fibres ou filaments choisies ne permet, en aucun cas, de dégager uniquement l'influence du diamètre. Toute comparaison entre les divers renforts fibreux reportés dans le tableau III.1 donne accès à l'influence couplée d'au moins deux caractéristiques. Le tableau III.2, reporté ci-contre, met ainsi en évidence les couples de renforts permettant d'effectuer une étude en fonction du diamètre et d'autres grandeurs physiques et géométriques.



Renfort n°1	Renfort n°2	Grandeurs physiques caractéristiques
Invar	SiC ( $\sigma$ )	$\rho_F, C_F$
Invar	Bore	$\rho_F, C_F$
SiC ( $\sigma$ )	Bore	$\rho_F, C_F, \lambda_F$

**Tableau III.3:** Couples de renforts fibreux permettant de mettre en évidence l'influence couplée de la masse volumique et d'autres caractéristiques physiques de fibres sur le phénomène d'absorption ou de rejet.

### 3.1.2.1.3 - Influence de la masse volumique du renfort fibreux:

Afin de privilégier l'influence du paramètre étudié, un fil d'invar (alliage fer/nickel à 64 % de fer et 36 % de nickel) de forte densité  $\rho_F = 8\text{g/cm}^3$  par rapport à l'aluminium liquide a été retenu.

Par analogie au paragraphe 3.1.2.1.2, cette étude est, pour des raisons similaires, relativement complexe. En effet, l'influence du paramètre "masse volumique" ne peut être facilement appréciée en comparant le comportement de deux renforts fibreux choisis parmi ceux cités dans le tableau III.1. Le tableau III.3 résume donc les couples de fibres pour lesquels il est possible de mettre en évidence l'influence couplée de la masse volumique  $\rho_F$  du renfort et d'autres caractéristiques physiques et géométriques.

### 3.1.2.2 - Préparation des renforts fibreux:

#### 3.1.2.2.1 - Les fibres de faible diamètre:

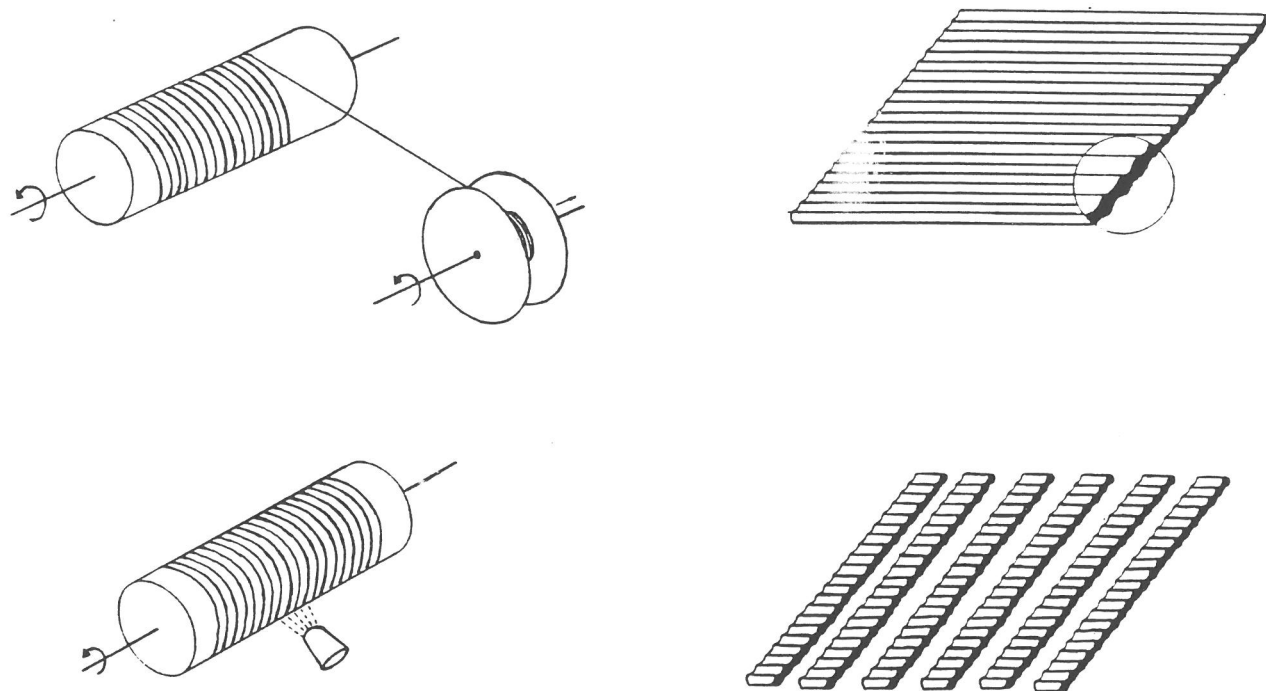
##### 3.1.2.2.1.a - La fibre de carbure de silicium Nicalon:

Le renfort fibreux de type Nicalon est disponible sous forme de fibres courtes multibrins de diverses longueurs. Des expériences préliminaires ont montré que l'utilisation de fibres d'une longueur de 6 millimètres facilite l'élaboration du matériau composite puisque le renfort fibreux se présente alors sous forme dispersée sans former d'agglomérats difficiles à éliminer en cours d'élaboration [6]. De façon, d'une part à éliminer la couche organique protectrice de la fibre (enzimage), d'autre part à améliorer le mouillage fibre/aluminium liquide lors de l'incorporation, un traitement thermique d'une heure à  $600^\circ\text{C}$  permet d'oxyder la surface du renfort fibreux pour obtenir une fine pellicule de silice dont l'épaisseur déterminée par microsonde Auger est voisine de 15 nm [6].

##### 3.1.2.2.1.b - Fibre de carbone P100 - Fibre d'alumine FP:

Les renforts fibreux utilisés se présentent sous forme de mèches de fibres longues si bien que l'incorporation de fibres courtes dans un bain d'aluminium liquide nécessite une opération préliminaire de découpage du renfort fibreux. De façon à uniformiser les conditions opératoires, la fibre d'alumine est coupée en longueurs voisines de celles de la fibre Nicalon, soit 6 millimètres.

Comme nous le verrons par la suite, le matériau composite à fibre de carbone est élaboré par une méthode différente. Dans ces conditions, la fibre de carbone est coupée et broyée jusqu'à obtention d'une longueur proche de celle des fibres Nicalon et FP après élaboration du composite, soit 200  $\mu\text{m}$ . En outre, aucun traitement thermique n'est effectué sur ces deux types de renforts fibreux.



**Figure III.3:** Etapes successives dans la préparation des renforts filamentaires courts [4],[5].

Renfort fibreux	Traitement thermique		Epaisseur de silice (nm)
	Durée (heure)	Température (°C)	
SiC( $\sigma$ )	1	600	15
SiC( $\sigma$ )	2	600	22
SiC( $\sigma$ )	5	600	30
SiC(Nicalon)	1	600	15

**Tableau III.4:** Epaisseur de silice sur les fibres de SiC (Nicalon) et SiC ( $\sigma$ ) en fonction du traitement thermique appliqué.

### 3.1.2.2.2 - Les renforts de gros diamètre:

Les divers filaments utilisés se présentent systématiquement sous forme de fibres longues si bien que l'obtention d'un renfort de faible longueur comporte plusieurs étapes.

Dans un premier temps, le filament continu est bobiné sous tension mécanique sur un mandrin (Figure III.3). Une deuxième étape consiste alors à appliquer un liant organique (mélange polystyrène-xylène) sur les fibres disposées autour du mandrin. Après séchage, une incision est faite dans l'enroulement suivant une génératrice du cylindre. Elle libère alors une nappe dans laquelle les fibres sont maintenues alignées par le liant organique [5]. Enfin, dans une troisième étape, des monocouches sont taillées dans cette nappe de façon à obtenir des filaments courts de longueur comprise entre un et deux millimètres. Les monocouches sont ensuite immergées dans un bain de xylène de façon à éliminer le liant organique et obtenir une dispersion de fibres courtes.

Ce type de renfort n'ayant jamais fait l'objet d'un matériau composite à matrice d'aluminium préparé par voie liquide, les traitements thermiques destinés à améliorer le processus d'élaboration ou les caractéristiques mécaniques du matériau final ne sont pas connus. Dans ces conditions, les filaments de bore et d'invar sont incorporés au sein de l'aluminium liquide immédiatement après l'opération de mise en forme des fibres courtes sans traitement particulier (absence d'enzimage). En revanche, de façon à obtenir des interfaces fibre/matrice identiques pour les fibres SiC (Nicalon) et ( $\sigma$ ) au sein du composite, le filament de carbure de silicium ( $\sigma$ ) est chauffé à 600°C durant une période de temps permettant d'obtenir une épaisseur de silice équivalente à celle observable sur la fibre SiC (Nicalon) traitée à la même température pendant une heure. Des traitements thermiques de durée variable ont donc été réalisés sur la fibre  $\sigma$ . L'épaisseur de silice résultante déterminée par microsonde de Castaing est mentionnée dans le tableau III.4. Conformément aux résultats obtenus, un traitement thermique identique en tout point est donc effectué sur les deux types de fibres de SiC.

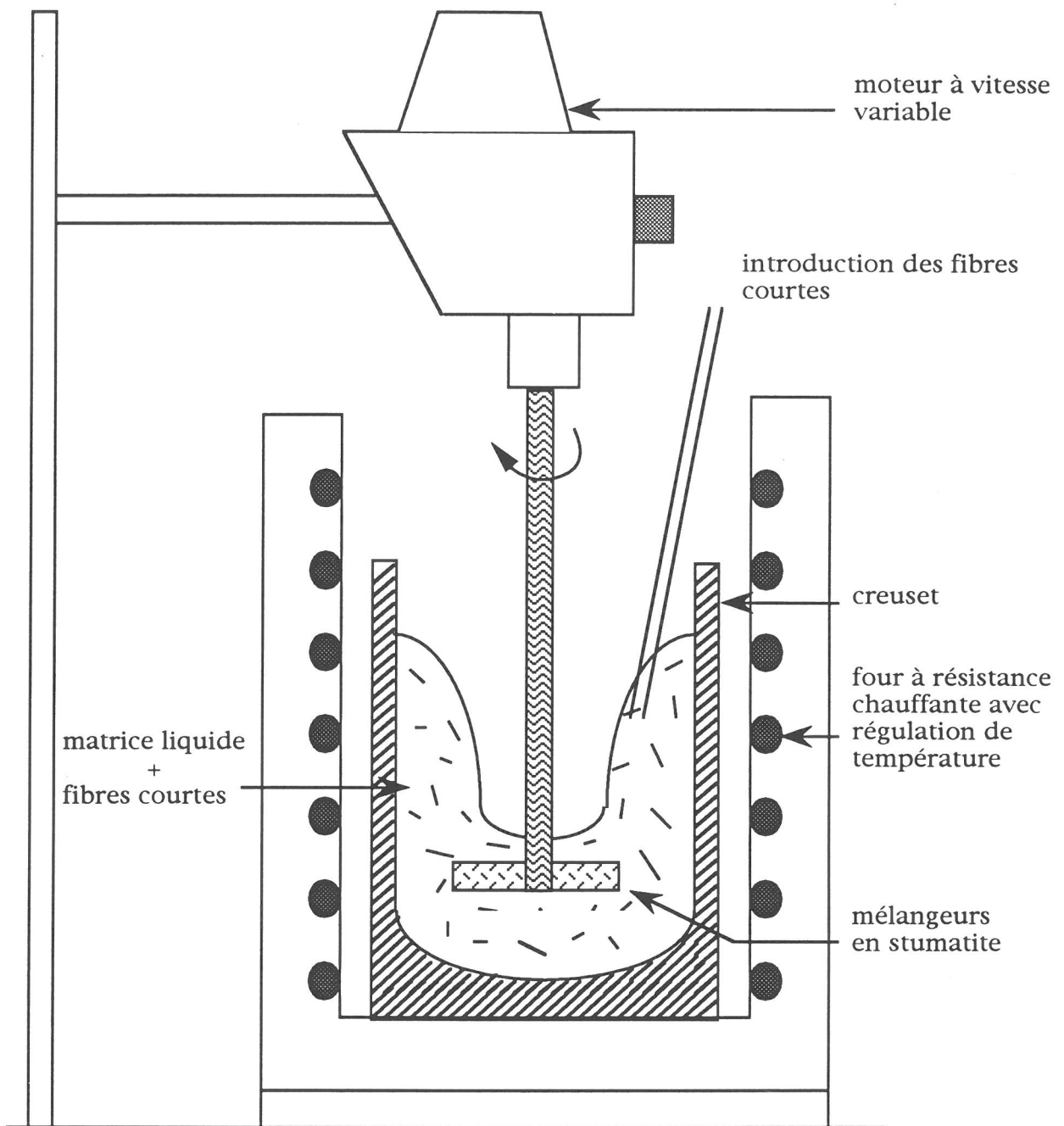
### 3.1.3 - Elaboration et mise en forme des matériaux:

#### 3.1.3.1 - Elaboration des matériaux:

##### 3.1.3.1.1 - *Brassage en phase semi-solide (rhéomoulage) ou liquide:*

Les procédés proposés pour incorporer des fibres courtes au sein d'une matrice d'aluminium dérivent de techniques proches de la fonderie et du forgeage. Parmi elles, le brassage en phase semi-solide ou liquide fait appel à des mélangeurs à vitesse variable créant dans le liquide un vortex ainsi que l'illustre la figure III.4.

Dans le cas des alliages d'aluminium, l'incorporation du renfort fibreux s'effectue en phase semi-solide de manière à diminuer la réactivité entre la matrice et la fibre [7]. La température d'élaboration comprise entre le solidus et le liquidus est déterminée en fonction du pourcentage de phase solide souhaité. Concernant par exemple l'alliage aluminium/silicium de type AS7G06, la matrice portée à une température proche de 620°C est agitée mécaniquement par l'intermédiaire



**Figure III.4:** Représentation schématique de l'incorporation de renforts courts par voie liquide ou semi-solide.

d'une hélice de forme bien définie, à vitesse variable comprise entre 600 et 1000 tours par minute [6].

Dans le cas de l'aluminium pur ou quasi-pur de type A5 (99.5 % de pureté), la transition entre l'état liquide et solide se traduit par une quasi-absence de phase intermédiaire ou phase semi-solide. L'élaboration du matériau composite s'effectue donc à la température du liquidus du métal considéré, c'est-à-dire autour de 660°C pour l'aluminium de type A5. Après avoir incorporé le renfort fibreux, le mélange est brassé durant quelques minutes de façon à obtenir un matériau de fraction volumique homogène. Au cours de cette étape, une opération de dégazage permet d'éliminer l'oxygène incorporé lors de l'élaboration [6]. Il convient également de préciser que cette méthode est destructrice puisque les fibres sont sectionnées lors de l'opération d'élaboration.

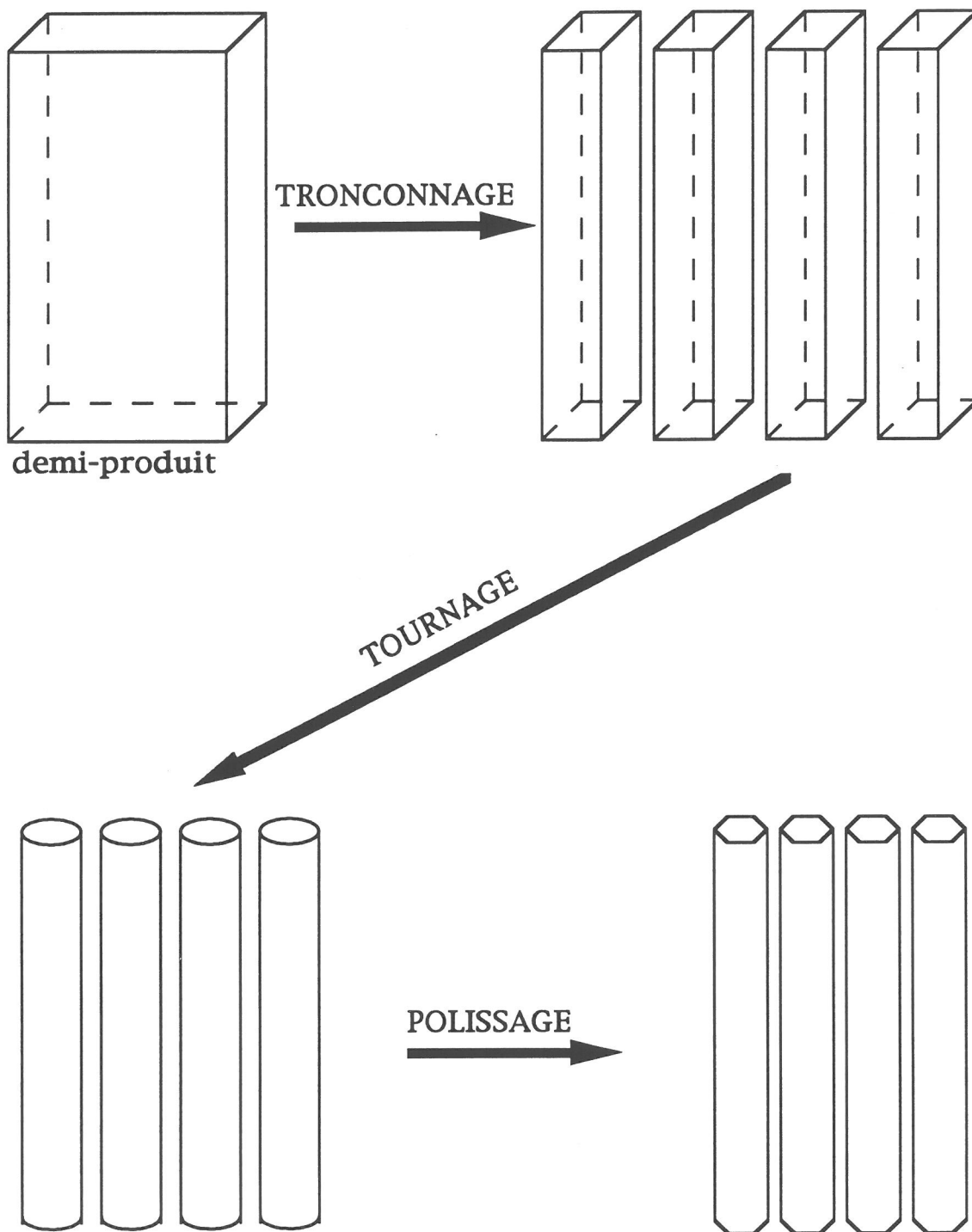
En ce qui concerne notre étude, l'ensemble des matériaux a été élaboré en utilisant cette technique expérimentale, à l'exception du composite à matrice d'aluminium pur renforcé par des fibres de carbone. En effet, après divers essais à température et agitation variables, la fibre de carbone est systématiquement rejetée hors du bain d'aluminium probablement pour des raisons (i) de réactivité entre la matrice liquide et la fibre conduisant à la formation de carbure d'aluminium de type  $Al_4C_3$  [7], (ii) de faible mouillage entre ces deux constituants ( $\theta < 90^\circ$  à  $T > 1000^\circ C$ ) [7], (iii) de faible masse volumique des fibres de carbone ( $\rho_F = 2 \text{ g/cm}^3$ ) par rapport à l'aluminium pur liquide ( $\rho_L = 2.37 \text{ g/cm}^3$ ) [7].

#### 3.1.3.1.2 - *Squeeze casting ou forgeage liquide:*

De façon à palier le mauvais mouillage et l'extrême réactivité du carbone à l'égard de l'aluminium quasi-pur à l'état liquide, un procédé d'élaboration proche des techniques de la fonderie et du forgeage appelé squeeze-casting est utilisé. Il consiste à imprégner une préforme de fibres courtes de perméabilité donnée par un métal liquide mis sous pression ( $\approx 100 \text{ MPa}$ ) par déplacement d'un piston. La réalisation de la préforme consiste dans notre cas à (i) mélanger les fibres de carbone de 200  $\mu m$  avec une poudre d'aluminium quasi-pur (A5), (ii) réaliser ensuite une opération de compactage dans un moule rectangulaire. L'aluminium quasi-pur liquide est alors coulé au-dessus de la préforme chauffée à une température de 550°C. Une pression appliquée sur le liquide ( $T = 720^\circ C$ ) par l'intermédiaire d'un piston permet d'infiltrer la préforme en liquéfiant la poudre d'aluminium de manière à éliminer au maximum les porosités.

#### 3.1.3.2 - Mise en forme des matériaux:

En ce qui concerne les matériaux élaborés par brassage liquide ou semi-solide, une opération de coulée dans un moule cylindrique de 10 cm de long et 8 cm de large chauffé à 550°C est effectuée après l'étape de dégazage. La température de coulée est alors choisie de telle sorte que le mélange soit suffisamment visqueux, cette condition étant nécessaire à l'obtention d'une fraction volumique homogène dans le matériau solidifié.



**Figure III.5:** Etapes successives dans la préparation des barreaux destinés à subir une opération de solidification dirigée.

En ce qui concerne le matériau composite à fibre de carbone élaboré par squeeze-casting, une opération de démoulage permet d'obtenir un demi produit de forme et dimension identiques à celui obtenu après coulée du composite rhéomoulé.

L'obtention de barreaux cylindriques de 15 mm de diamètre requiert tout d'abord une opération de tronçonnage du produit conduisant à des barreaux de section rectangulaire de 10 cm de long (Figure III.5). Il s'ensuit une étape de tournage permettant d'obtenir un échantillon cylindrique prêt à être traité par solidification dirigée.

#### 3.1.4 - Caractérisation des matériaux:

##### 3.1.4.1 - Vérification de l'homogénéité du barreau en terme de fraction volumique:

La radiographie s'avérant inefficace lorsqu'il s'agit de détecter des objets de taille micronique telles que les fibres, la microscopie optique pouvait être considérée comme une méthode de caractérisation adaptée. Dans ces conditions, une observation des surfaces polies des échantillons obtenus après l'opération de tournage permet de vérifier que la fraction volumique est homogène au sein de chacun des barreaux issus du demi-produit de départ (Figure III.5). A titre de remarque, les échantillons polis n'ont plus une section cylindrique mais polygonale.

##### 3.1.4.2 - Taille des fibres:

L'observation micrographique des surfaces polies des échantillons traités ne permet pas de mettre en évidence la taille du renfort fibreux. En effet, le matériau composite à fibres courtes se caractérise par une orientation aléatoire du renfort au sein de la matrice. De manière à estimer la longueur des fibres, il serait donc nécessaire que la surface soit polie parallèlement à l'axe du renfort fibreux, ce qui s'avère impossible pour ce type de matériau. Face à cette difficulté, une dissolution de la matrice du matériau composite dans une solution de soude concentrée permet de récupérer les fibres courtes sur une lame de verre mince. Une observation au microscope optique permet alors d'effectuer une mesure statistique des longueurs de fibres après élaboration.

Le tableau III.5 présente les résultats obtenus sur les matériaux composites élaborés.

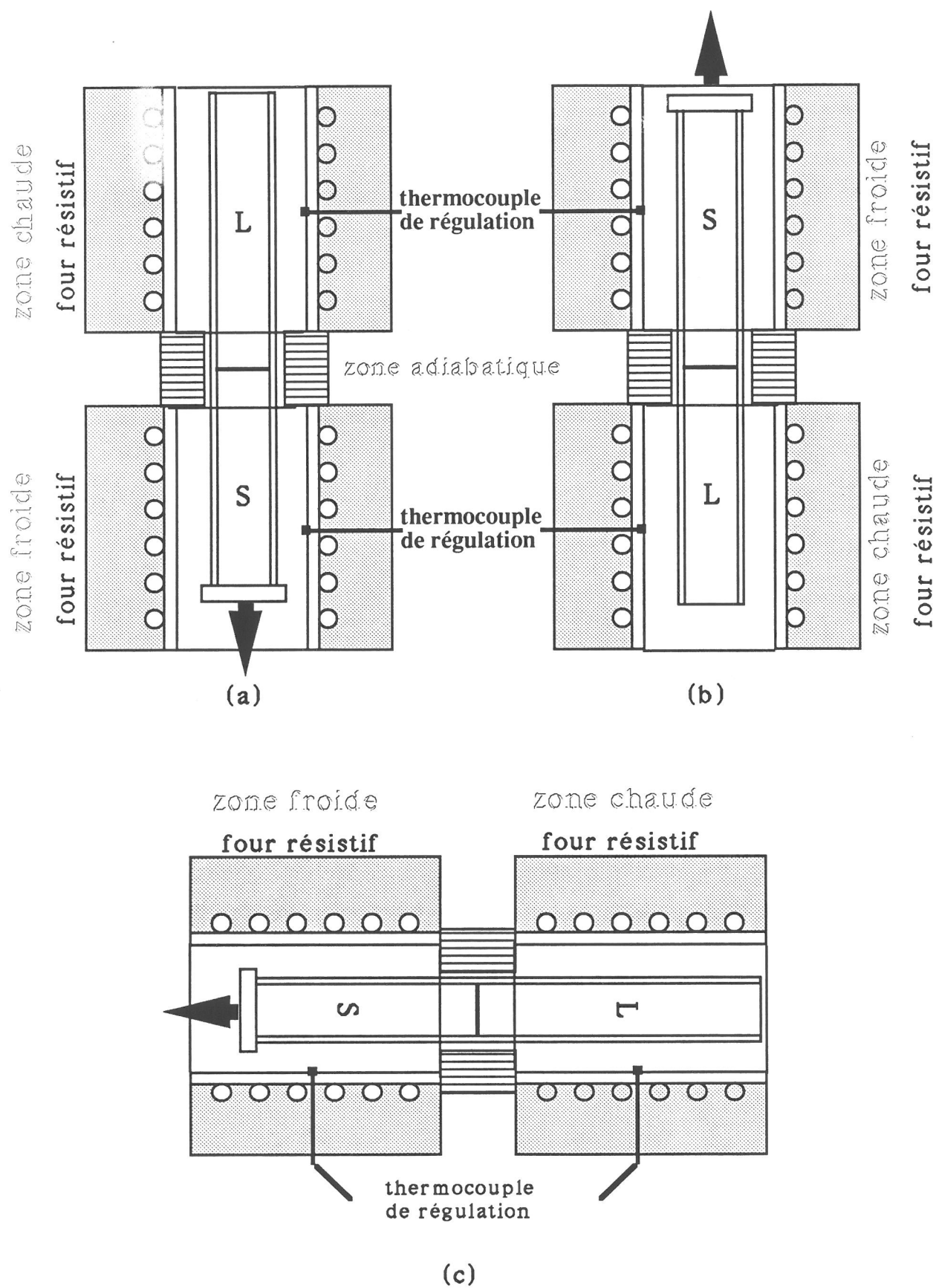
En ce qui concerne le système A5/SiC(Nic), les longueurs  $L_F$  de fibres après élaboration sont d'autant plus faibles que la fraction volumique au sein du matériau final est élevée. Cette observation peut s'expliquer de deux façons:

- 1- le cisaillement du renfort fibreux occasionné par le brassage mécanique de la matrice conduit à une destruction croissante des fibres avec la durée d'élaboration, c'est à dire avec la fraction volumique au sein du matériau final;



Matrice/renfort	$V_F$ (%)	$L_F$ après élaboration ( $\mu\text{m}$ )
A5/SiC (Nic)	1	200
A5/SiC (Nic)	2	190
A5/SiC (Nic)	5	170
A5/ $\text{Al}_2\text{O}_3$	1	200
A5/Carbone	1	200
A5/SiC ( $\sigma$ )	1	500
A5/Bore	1	500

**Tableau III.5:** Taille du renfort en fonction de la fraction volumique de fibres et de la nature de la matrice utilisée.



**FIGURE III.6:** schéma d'un four de bridgman vertical classique (a), vertical inversé (b) et horizontal (c).

- 2- les chocs entre fibres sont d'autant plus fréquents que l'espace interfibre diminue, c'est à dire que la fraction volumique augmente au sein du matériau durant l'élaboration.

Après élaboration et à fraction volumique de renforts égale, la longueur moyenne des filaments de gros diamètre tels que le bore ou le carbure de silicium( $\sigma$ ) est plus importante que celle des fibres de carbure de silicium(Nic) et d'alumine(FP). Cette observation, d'autant plus intéressante que les longueurs des filaments avant élaboration étaient inférieures, s'explique par une plus grande fragilité des fibres de petit diamètre.

Enfin, il n'est pas raisonnable d'établir une comparaison des longueurs des renforts entre le système A5/carbone élaboré par squeeze-casting et les autres systèmes répertoriés dans le tableau III.5 résultant d'une élaboration par rhéomoulage. Tout au plus, peut on constater que les longueurs des fibres de carbone avant et après élaboration sont proches, ce qui nous autorise à penser que le squeeze-casting est une méthode moins destructrice que le rhéomoulage.

### 3.2 - TRAITEMENT DE SOLIDIFICATION DIRIGEE:

#### 3.2.1 - Appareillage utilisé:

De façon à étudier l'influence des conditions de solidification sur le phénomène d'absorption ou de rejet, il convient de choisir parmi les techniques de solidification dirigée, celle qui permet d'obtenir le meilleur compromis de stabilité thermique et de contrôle (i) de la forme du front de solidification, (ii) du gradient thermique à l'interface S/L, (iii) de la vitesse de solidification.

La solidification dirigée de type Bridgman, satisfaisant assez bien à ces exigences, s'inscrit comme une méthode particulièrement intéressante pour notre étude [18]. De façon générale, un appareillage de solidification dirigée tel que celui développé au laboratoire est constitué:

- d'une zone chaude représentée dans notre cas par un four résistif régulant au-dessus de la température de liquidus de la matrice ;
- d'une zone froide dans laquelle le matériau est refroidi en dessous de sa température de fusion ;
- d'une zone adiabatique séparant les domaines de haute et basse température.

La disposition relative de chaque zone définit le type de méthode utilisée, à savoir un appareillage de type Bridgman horizontal, vertical classique ou vertical inversé (Figure III.6). De manière à s'affranchir des mouvements convectifs difficilement quantifiables, la première méthode est éliminée.

L'appareil de solidification dirigée de type Bridgman vertical mis en oeuvre au laboratoire dispose également d'un système de translation permettant de contrôler la vitesse de

solidification de l'interface S/L. Plusieurs moteurs reliés à une tige filetée par l'intermédiaire d'un réseau d'engrenage assurent ainsi un déplacement vertical du système creuset/échantillon de façon à translater le front de solidification vers le bas ou le haut du barreau traité.

Après avoir décrit le système permettant de réguler la vitesse de solidification, il convient de préciser les moyens mis en oeuvre pour (i) stabiliser la forme de l'interface S/L et (ii) contrôler les gradients thermiques au niveau du front de solidification.

La première difficulté est résolue (i) en interposant entre les domaines de haute et basse température, une zone adiabatique au sein de laquelle le flux de chaleur radial au voisinage du front de solidification est nul ou négligeable [20], (ii) en disposant le barreau d'aluminium dans un creuset fortement conducteur thermique [21].

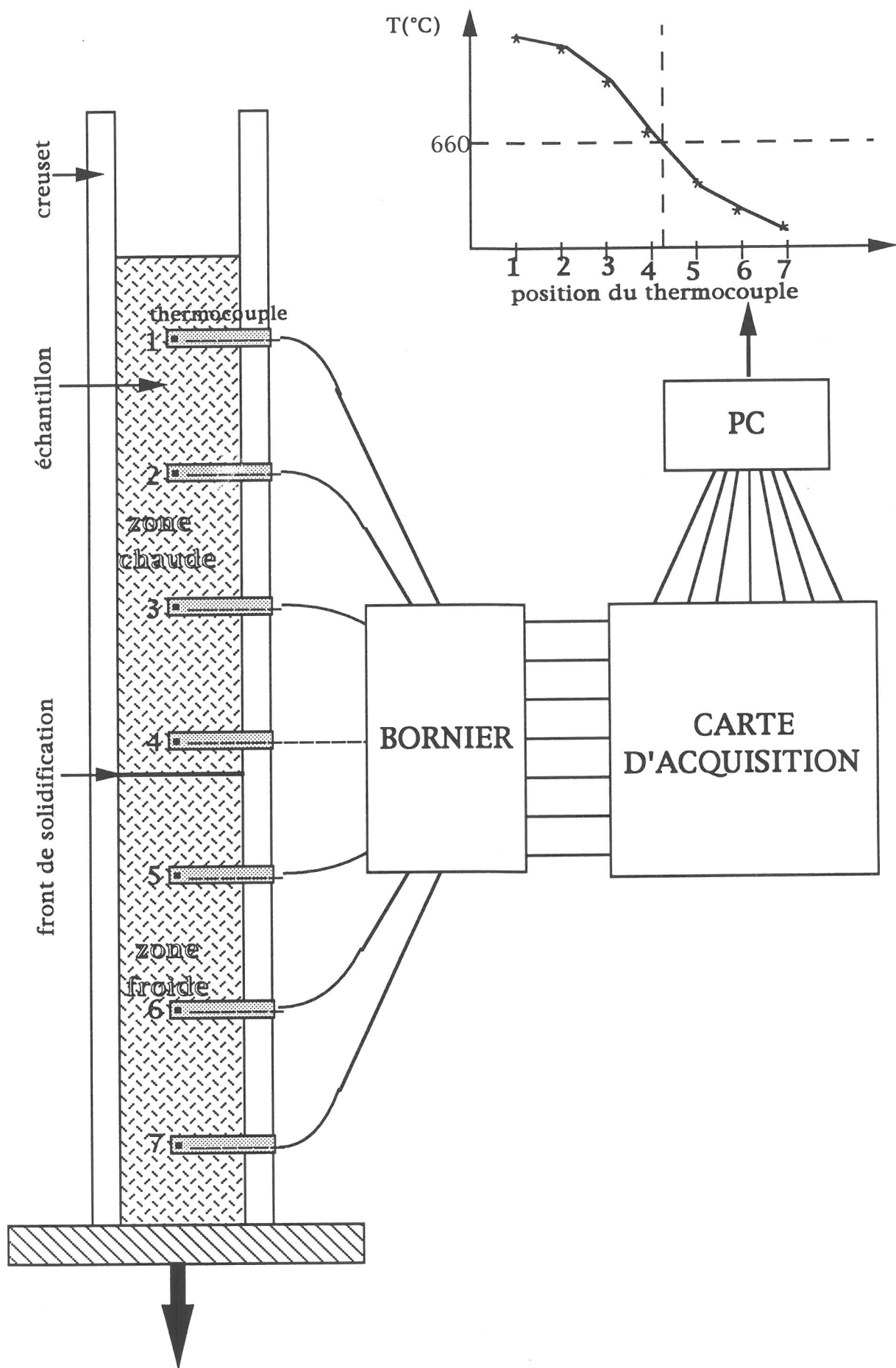
La première proposition entraîne une disparition ou tout au moins une forte diminution des gradients thermiques transversaux si bien que la convection naturelle est quasi-inexistante au niveau de l'interface S/L. En conséquence, des isothermes parallèles au front de solidification se développent au sein du matériau situé dans cette zone et conduisent à une géométrie d'interface beaucoup moins sensible aux perturbations thermiques susceptibles d'apparaître au sein du système [20],[23]. Un front de solidification plan de grande stabilité coexiste donc au sein de cette zone lors de la solidification dirigée d'une matrice d'aluminium pur si la hauteur de ce domaine est suffisamment importante.

Selon diverses études [21], l'utilisation d'un creuset de conductivité thermique élevée conduit à une meilleure stabilité de la position et de la forme de l'interface S/L uniquement lors de la solidification dirigée de matériaux fortement conducteurs thermiques. Nous avons donc choisi d'utiliser un creuset en graphite de conductivité thermique voisine de 100 W/m.K [25] se présentant sous forme d'un tube cylindrique de diamètre intérieur et extérieur respectivement égal à 15 et 30 mm.

Après avoir défini les dimensions du creuset utilisé, il convient de préciser la hauteur de la zone adiabatique du four Bridgman mis en oeuvre durant cette étude. Mise à part la stabilité de l'interface S/L, la hauteur de cette zone adiabatique influence également les gradients thermiques au niveau du front de solidification [20]. En effet, il a été montré que ces derniers sont d'autant plus faibles que:

- la hauteur de ce domaine est importante ;
- la conductivité thermique du matériau traité est élevée ;
- la chaleur latente de solidification est grande.

Dans le cadre de notre étude, il s'avère intéressant de pouvoir varier les gradients thermiques à l'interface S/L de façon suffisamment importante pour essayer de mettre en évidence l'influence de ce paramètre sur le phénomène d'absorption ou de rejet. Dans ces conditions, la hauteur de la zone adiabatique doit être la plus faible possible puisque le matériau traité, à savoir un composite à matrice d'aluminium, est fortement conducteur thermique et possède une chaleur



**Figure III.7:** Dispositif expérimental permettant d'accéder au profil thermique au sein de l'échantillon en cours de solidification dirigée.

latente de solidification importante. En revanche, toute diminution trop importante de la hauteur de cette zone se traduit par une stabilité précaire du front de solidification. Un compromis entre le contrôle des gradients thermiques sur une large gamme (en particulier l'obtention de gradients thermiques élevés) et la stabilité du front de solidification nous a conduit à fixer la hauteur  $H_{za}$  de ce domaine à quatre centimètres, valeur en accord avec celle observée dans diverses études de solidification dirigée de matériaux fortement conducteurs thermiques [22]. Cette zone est constituée d'un empilement de feuilles d'isolants thermiques (Zircar) jusqu'à obtention de la hauteur souhaitée. Un cercle est alors découpé sur chacun des feuillets empilés si bien que l'alésage obtenu permet alors de translater l'échantillon au sein de cette zone.

Après avoir discuté la stabilité de la forme du front de solidification, il convient de s'intéresser au contrôle des gradients thermiques à l'interface S/L. A nouveau, la forte conductivité thermique de l'aluminium pose un problème délicat puisque l'utilisation d'une zone froide conventionnelle conduit à des gradients thermiques plutôt faibles au voisinage du front de solidification même en augmentant la température de la zone chaude. Le système permettant d'accéder à de telles conditions de gradients thermiques se caractérise par un four résistif réglant en dessous de la température de liquidus du matériau de telle sorte que l'appareil Bridgman est alors constitué de deux fours thermiques d'une longueur égale à 20 cm portés à des températures différentes et séparés par une zone adiabatique.

La substitution du four thermique de la zone froide par un réseau de ventilateur à convection forcée constitue une des solutions auxquelles nous avons pensé pour augmenter les gradients thermiques à l'interface S/L. Ce système est disposé de façon à envoyer un courant d'air convectif sur l'échantillon à sa sortie de la zone adiabatique. Quelques expériences préliminaires ont montré l'efficacité de ce système; cependant, un nouveau dispositif technologique dont le mode de fonctionnement est explicité dans ce qui suit, a été développé de façon à atteindre des gradients thermiques relativement forts.

Le montage permet de projeter des vapeurs d'azote refroidies par azote liquide sur l'échantillon dès lors qu'il quitte la zone adiabatique. Ce système utilise un tube de cuivre d'un diamètre de 6 mm percé tous les 2 cm sur une longueur de un mètre. La zone percée est ensuite enroulée autour d'un rondin de 35 mm de diamètre de manière à obtenir une spire cylindrique d'une hauteur égale à 6 cm. Tandis qu'une extrémité de la spire est colmatée, l'autre est positionnée à l'intérieur d'un Dewar au-dessus du niveau d'azote liquide qui s'y trouve. Une surpression appliquée à l'intérieur du Dewar permet de faire circuler l'azote gazeux au travers de l'azote liquide jusqu'à la spire cylindrique percée permettant alors de refroidir l'échantillon.

Le profil thermique au sein de l'échantillon permettant, entre autres, de déterminer les gradients thermiques dans le liquide et le solide au voisinage du front de solidification est obtenu en disposant les thermocouples au sein du barreau d'aluminium traité tel que le montre la figure III.7.

Une protection à base d'alumine et de zircone est déposée sur la gaine des capteurs de température afin d'éviter leur destruction au contact de l'aluminium liquide. L'ensemble des thermocouples est relié à un ordinateur par l'intermédiaire d'un bornier et d'une carte d'acquisition

permettant de convertir les signaux analogiques fournis par les thermocouples en signaux numériques directement exploitables par l'ordinateur. Un logiciel permet alors de traiter les données et en particulier de sélectionner les profils de température lors de la translation de l'échantillon en choisissant une fréquence d'échantillonnage adaptée à la vitesse imposée.

### 3.2.2 - Mode opératoire:

De façon à se rapprocher des conditions de stabilité maximale du front de solidification, il est primordial que l'interface S/L demeure dans la zone adiabatique du début jusqu'à la fin de la translation de l'échantillon. Or, pour un échantillon de longueur finie ( $L = 10\text{cm}$ ) translaté depuis la zone chaude vers la zone froide, les conditions de flux thermique en zone chaude et froide varient avec les volumes d'échantillon situés dans chacune des deux zones [19]. La position de l'interface S/L ainsi que l'amplitude des gradients thermiques au niveau du front de solidification ne peuvent donc qu'évoluer au cours de l'expérience de solidification dirigée. Ce phénomène est en outre d'autant plus marqué que (i) le matériau est bon conducteur thermique, (ii) la vitesse de translation est grande [22],[24]. Une des solutions permettant, non pas d'éliminer ce mécanisme, mais de diminuer son influence consiste à se rapprocher des conditions pour lesquelles l'échantillon est considéré de longueur infinie. Dans cette optique, Fu et Wilcox [23] préconisent que la longueur d'échantillon au sein de chacune des zones chaudes et froides  $L_e$  soit au moins égale à six fois le diamètre intérieur du creuset durant la totalité de l'expérience. Pour un échantillon de diamètre égal à 15 mm,  $L_e$  doit donc être à chaque instant supérieure ou égale à 9 cm. Par conséquent, pour une translation du creuset sur une longueur  $L_t$  égale à 10 cm, la longueur totale  $L_T$  de matériau au sein du tube doit au moins être égale à  $L_T = 2 \cdot L_e + L_t + H_{za}$  soit 32 cm.

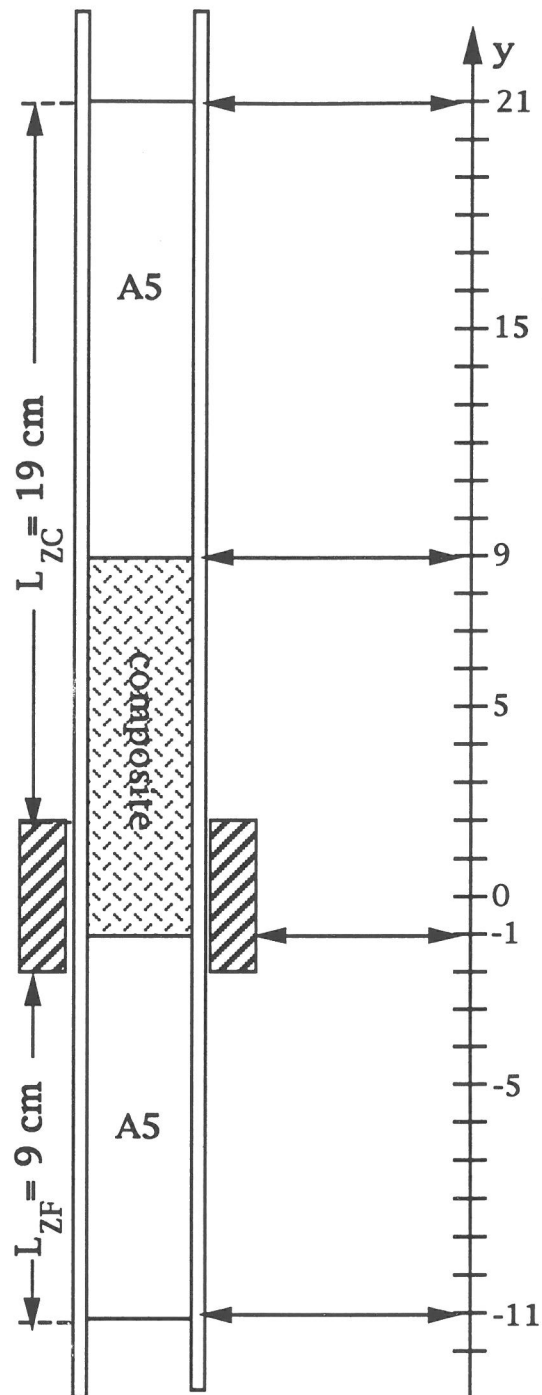
Nous avons donc choisi d'utiliser un creuset de 35 cm de long au sein duquel coexisteront (i) l'échantillon à traiter de 10 cm de long, (ii) deux barreaux d'aluminium quasi-pur A5 de même diamètre et de longueurs variables. Leur disposition relative est choisie de telle sorte que l'échantillon à traiter soit borné par les barreaux d'aluminium pur.

A ce stade de notre étude, définissons les conditions de température imposées dans chacune des zones chaudes et froides en fonction du gradient thermique souhaité.

#### 3.2.2.1 - Condition de vitesse de translation faible:

Quelques expériences préliminaires de solidification dirigée au sein de l'appareillage Bridgman ont montré, qu'à faible vitesse  $V_T$  de translation du creuset, la vitesse  $V_y$  de solidification est légèrement supérieure à  $V_T$ . Par conséquent, pour un déplacement du creuset dans le sens de l'accélération de la pesanteur, le front de solidification n'est pas totalement immobile mais se déplace légèrement vers le haut de la zone adiabatique en raison de la diminution du flux thermique en zone chaude. Il est donc primordial de placer, au début de l'expérience,





**Figure III.8:** Positionnement de l'échantillon à traiter et des deux barreaux d'A5 au sein du creuset pour les expériences de solidification dirigée à faible vitesse de translation.



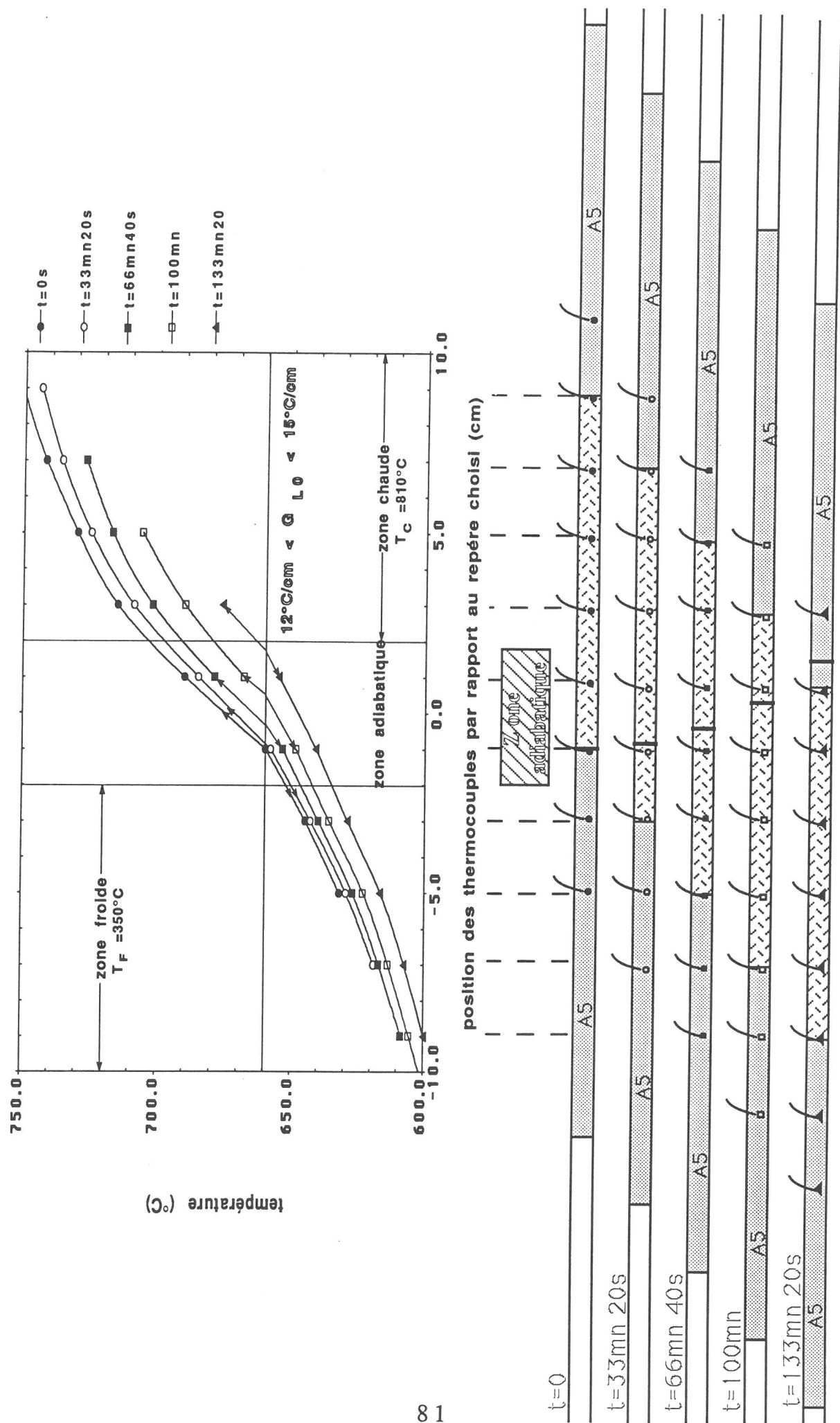
l'interface S/L dans la partie basse de la zone adiabatique de façon à éviter qu'elle ne quitte cette zone en fin d'expérience.

Ayant choisi un repère fixe centré sur cette zone, il nous faudra choisir les conditions de température en zone chaude et froide permettant de positionner, au début de l'expérience, le front de solidification en position -1 par exemple. De plus, de façon à se rapprocher des conditions maximales de stabilité du front de solidification, il est primordial que les longueurs de matériau en zone froide et chaude demeurent au moins égales à 9 cm durant la translation du creuset sur une longueur de 10 cm équivalente à celle de l'échantillon à traiter. Face à ces exigences, nous proposons une disposition de l'échantillon à traiter et des deux barreaux d'aluminium quasi-pur telle que celle présentée sur la figure III.8.

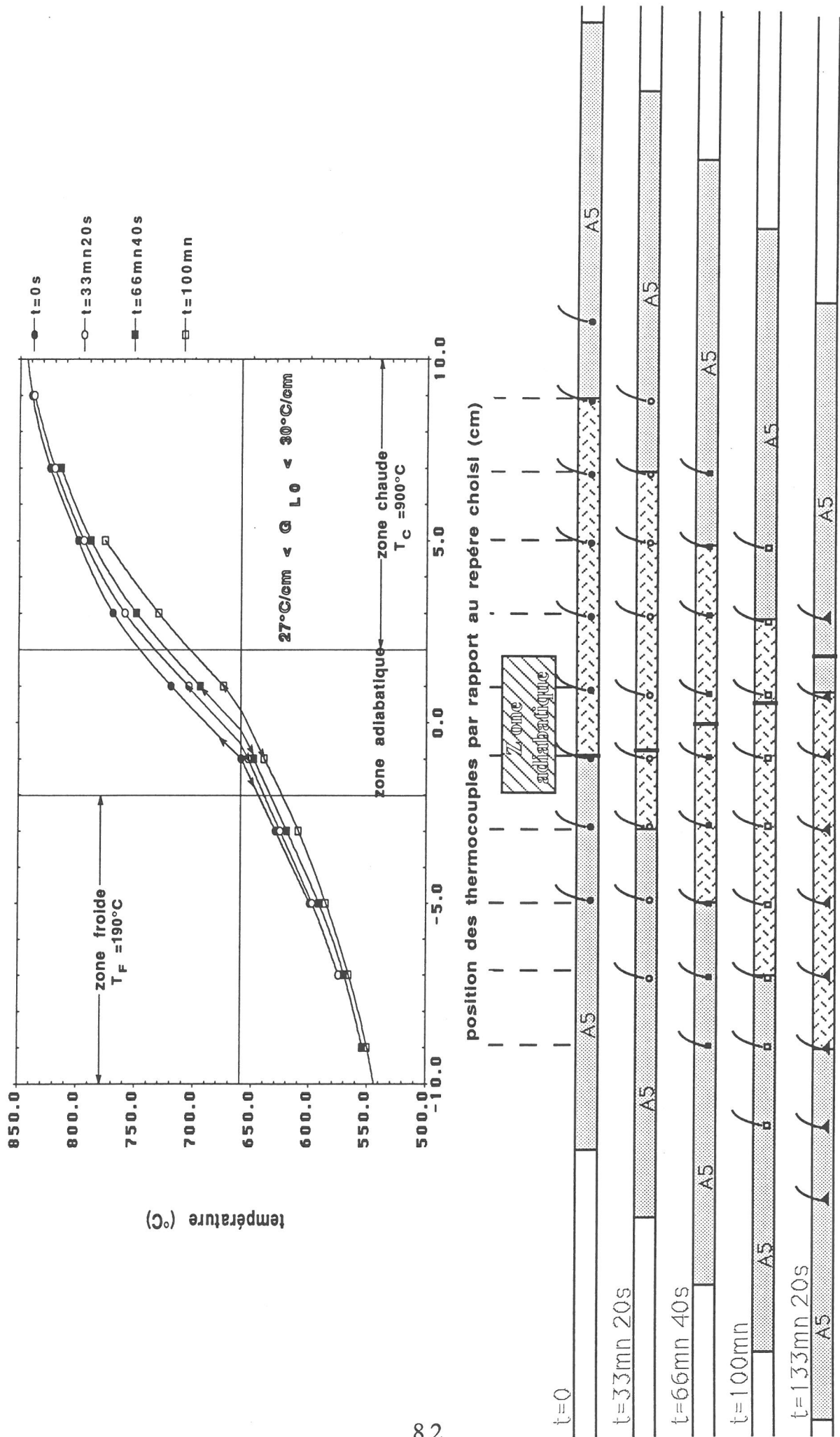
L'échantillon d'une longueur égale à 10 cm est inséré dans la partie centrale du creuset (position -1 à 9) entre deux barreaux d'aluminium quasi-pur A5 (Figure III.8). Le premier d'entre eux se situe dans la partie inférieure du tube (position -1 à -11) et s'étend sur une longueur de 10 cm dans la zone froide ( $L_{ZF} = 9$  cm). Le second occupe la partie supérieure du tube (position 9 à 21), si bien que 19 cm de matériau coexistent en zone chaude ( $L_{ZC} = 19$  cm). La condition de stabilité de la position du front de solidification et des gradients thermiques à l'interface S/L est en outre satisfaite puisque  $L_{ZF}$  et  $L_{ZC}$  reste supérieure à  $L_e$  du début à la fin de l'expérience.

De façon à (i) stabiliser le front de solidification en position -1 au début de l'expérience, (ii) pouvoir varier le gradient thermique dans le liquide au voisinage de l'interface S/L pour étudier l'influence de ce paramètre sur le phénomène d'absorption ou de rejet, trois couples ( $T_C, T_F$ ) de température imposés en zone chaude et froide ont été expérimentés. Ils permettent de faire une étude à gradient thermique (i) faible dans le liquide c'est-à-dire proche de  $15^\circ\text{C}/\text{cm}$ , (ii) plutôt élevé de l'ordre de  $50^\circ\text{C}/\text{cm}$ , (iii) enfin intermédiaire c'est à dire voisin de  $30^\circ\text{C}/\text{cm}$ . Les gradients thermiques faibles et intermédiaires résultent de conditions de température différentes imposées aux deux fours situés en zone chaude et froide tandis que ceux proches de  $50^\circ\text{C}/\text{cm}$  sont obtenus en remplaçant le four situé en zone froide par un réseau de ventilateur à convection forcée. Des expériences complémentaires ont également permis d'atteindre des gradients thermiques proches de  $60$  à  $70^\circ\text{C}/\text{cm}$  en utilisant le système de refroidissement à azote gazeux. Cependant, la stabilité de la position du front de solidification est alors difficile à contrôler si bien qu'il quitte la zone adiabatique en cours d'expérience. Par conséquent, nous n'utiliserons pas ce système pour notre étude.

Pour chaque condition de température imposée en zone chaude et froide, l'évolution du profil thermique au sein de l'échantillon à faible vitesse de translation ( $V_T=10\mu\text{m/s}$ ) est représentée à chaque instant sur les figures III.9, III.10 et III.11 en fonction de la position du creuset. Chaque profil est obtenu après des translations successives du creuset de 2 cm correspondant aux temps intermédiaires suivants:  $t=33\text{mn}20\text{s}$  ( $\tau=2\text{cm}$ ),  $t=66\text{mn}40\text{s}$  ( $\tau=4\text{cm}$ ),  $t=100\text{mn}$  ( $\tau=6\text{cm}$ ),.... La position du front de solidification est obtenue après chaque translation de 2 cm en interpolant séparément les points situés au-dessus et en dessous du point de fusion de l'aluminium quasi-pur A5. La pente de chaque profil thermique dans le liquide et le solide au voisinage de la température

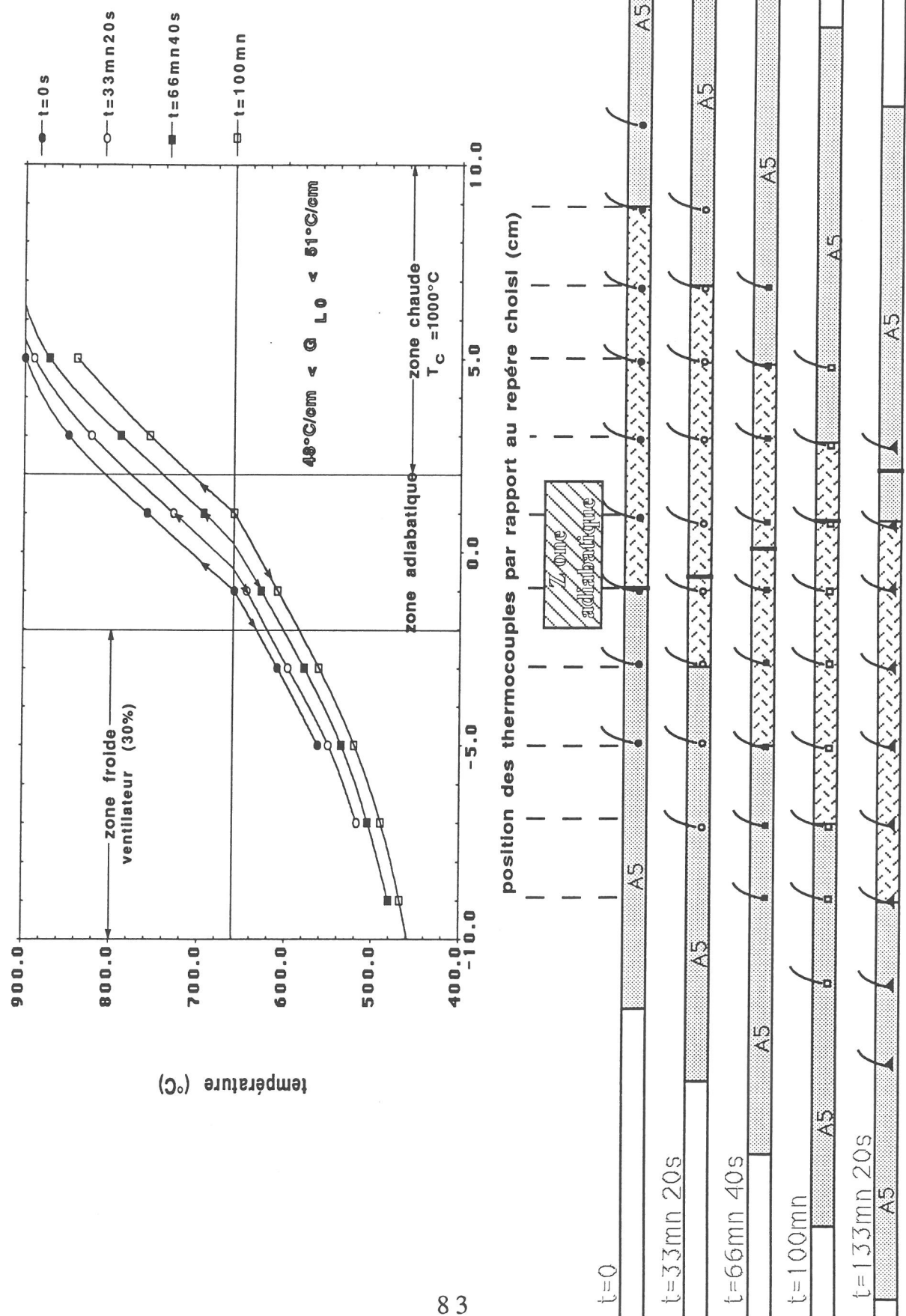


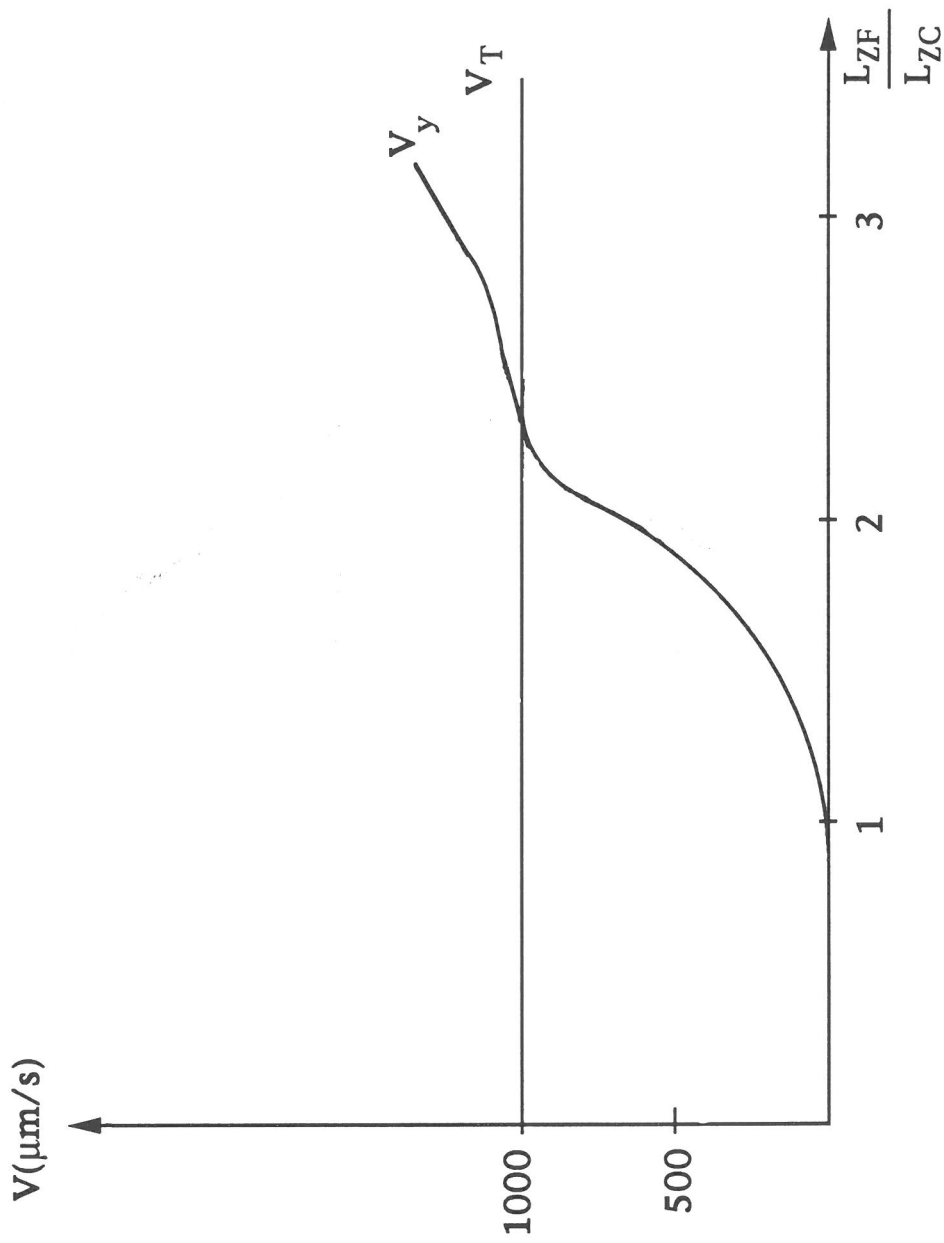
**Figure III.2:** Evolution du profil thermique au sein de l'échantillon en fonction du temps à faible vitesse de translation du creuset ( $V_y = 10 \mu\text{m/s}$ ).



**Figure III.10:** Evolution du profil thermique au sein de l'échantillon en fonction du temps à faible vitesse de translation du creuset ( $V_y = 10\mu\text{m/s}$ ).

1. Front de solidification





**Figure III.12:** Allure de la vitesse  $V_y$  de solidification lorsque la vitesse  $V_T$  de translation est élevée ( $V_T = 1000 \mu\text{m/s}$ ).

de fusion de la matrice donne accès aux gradients thermiques dans chacune des deux phases après chaque translation de deux centimètres.

L'examen des figures III.9, III.10 et III.11 montre qu'il existe une discontinuité des profils thermiques au voisinage du point de fusion de l'aluminium quasi-pur. En effet, le gradient thermique dans le liquide est systématiquement supérieur et même à peu près deux fois plus important que celui du solide. Cette observation résulte de la différence de conductivité thermique entre l'aluminium liquide et solide où  $\lambda_S \approx 2 \lambda_L$  en régime non convectif. Enfin, l'évolution des gradients thermiques dans le liquide et le solide entre le début et la fin d'une expérience de solidification dirigée est faible pour chacune des trois conditions opératoires étudiées, à savoir :

- vitesse faible - gradient thermique faible (Figure III.9);
- vitesse faible - gradient thermique intermédiaire (Figure III.10);
- vitesse faible - gradient thermique élevé (Figure III.11).

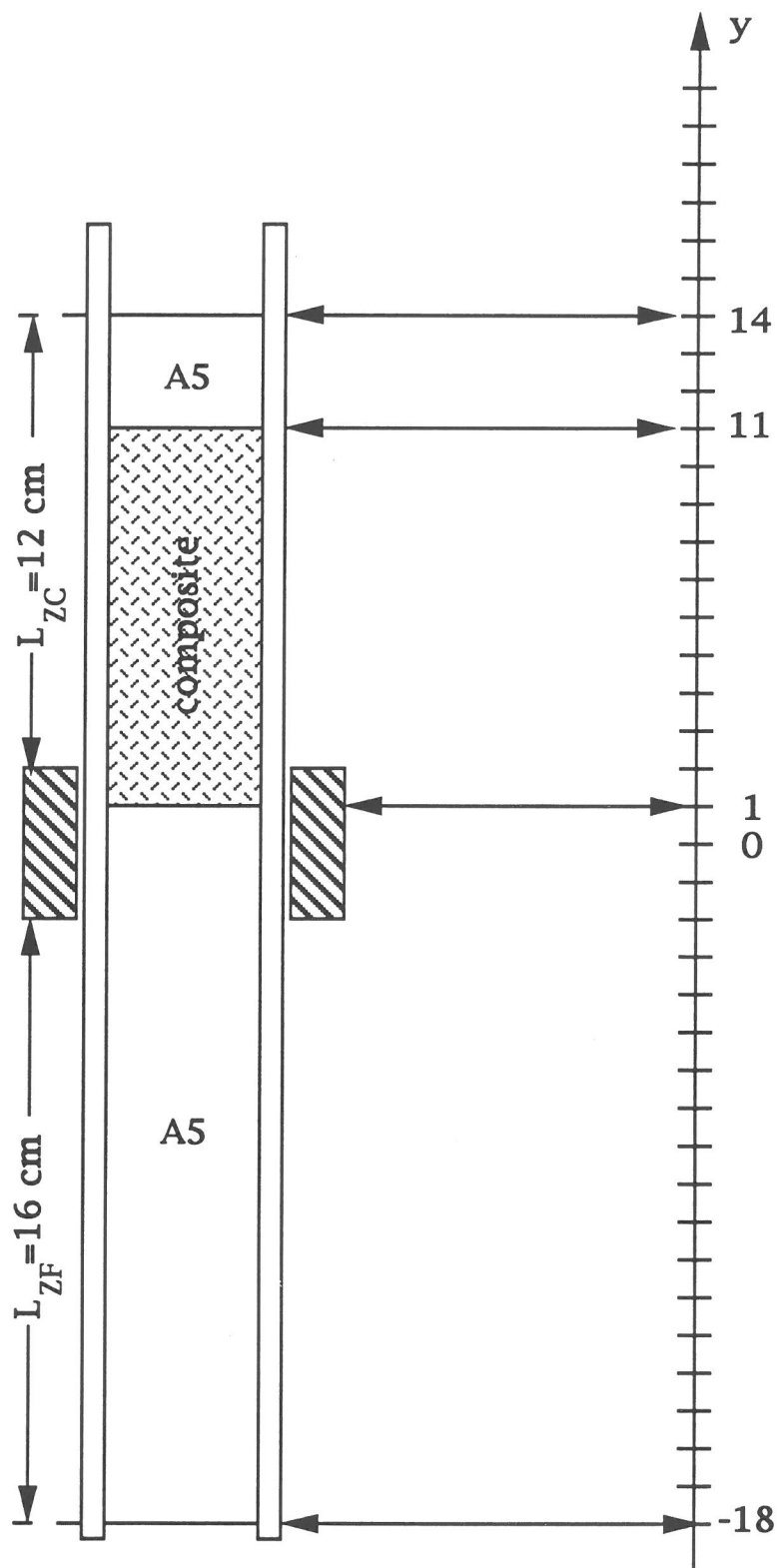
#### 3.2.2.2 - Condition de vitesse de translation élevée:

Quelques expériences de solidification dirigée au sein de l'appareillage Bridgman ont montré, qu'à vitesse  $V_T$  élevée de translation du creuset, la vitesse  $V_y$  de solidification est très sensible aux variations du rapport  $\Phi_{ZF}/\Phi_{ZC}$  du flux thermique en zone froide et chaude. Cette constatation est mise en évidence par la figure III.12 représentant l'allure de la variation de la vitesse  $V_y$  de solidification en fonction du rapport  $L_{ZF}/L_{ZC}$  des longueurs de matériau en zone froide et chaude. A l'image de la figure III.12, deux remarques peuvent être mentionnées:

- Il existe un rapport critique  $(L_{ZF}/L_{ZC})_C$  des longueurs de matériau en zone froide et chaude au-delà duquel la vitesse  $V_y$  de solidification est supérieure à la vitesse  $V_T$  de translation du creuset et en dessous duquel  $V_y < V_T$ . Le premier régime, caractérisé par  $V_y > V_T$ , est atteint lorsque le flux thermique en zone chaude parvient à un seuil critique en dessous duquel la position du front de solidification n'est plus stable. Le second régime, caractérisé par  $V_y > V_T$ , s'explique par la forte capacité calorifique volumique de l'aluminium conduisant à un refroidissement trop lent de chacune des parcelles de matériau translaté.

- Quelque soit le rapport initial  $(L_{ZF}/L_{ZC})_0$  des longueurs de matériau en zone froide et chaude, il existe, au début de l'expérience, une période transitoire durant laquelle la vitesse  $V_y$  de solidification est très inférieure à la vitesse  $V_T$  de translation du creuset.

Dans le cas où le creuset se déplace vers le bas, la prise en compte de la seconde remarque nous oblige à positionner, au début de l'expérience, le front de solidification dans la partie haute de la zone adiabatique de façon à éviter qu'il ne quitte cette zone pour se stabiliser en zone froide.



**Figure III.13:** Positionnement de l'échantillon à traiter et des deux barreaux d'A5 au sein du creuset pour les expériences de solidification dirigée à vitesse de translation élevée.

De plus, par l'intermédiaire de la première remarque, nous concluons qu'il faut optimiser le rapport  $(L_{ZF}/L_{ZC})_0$  de façon à atteindre le rapport  $(L_{ZF}/L_{ZC})_C$  lorsque le front de solidification se situe en bas de la zone adiabatique. Dans la mesure où cette condition serait satisfaite, le front de solidification stopperait sa progression vers la zone froide pour remonter vers le haut de la zone adiabatique. L'objectif principal consistant à maintenir l'interface S/L au sein de la zone adiabatique serait alors atteint.

Quelques expériences préliminaires ont été nécessaires pour déterminer le rapport initial  $(L_{ZF}/L_{ZC})_0$  permettant d'accéder à des conditions maximales de stabilité du front de solidification. Compte tenu des résultats obtenus, une configuration particulière de l'échantillon et des deux barreaux d'aluminium quasi-pur au sein du creuset a été retenue.

Dans le repère fixe centré sur la zone adiabatique, l'échantillon se situe entre la position 1 et 11 tandis que deux barreaux d'aluminium quasi-pur sont placés pour l'un entre la position - 18 et 1, pour l'autre entre la position 11 et 14. Les longueurs initiales de matériau en zone froide et chaude sont respectivement égales à  $L_{ZF0}=16$  cm et  $L_{ZC0}=12$  cm (Figure III.13).

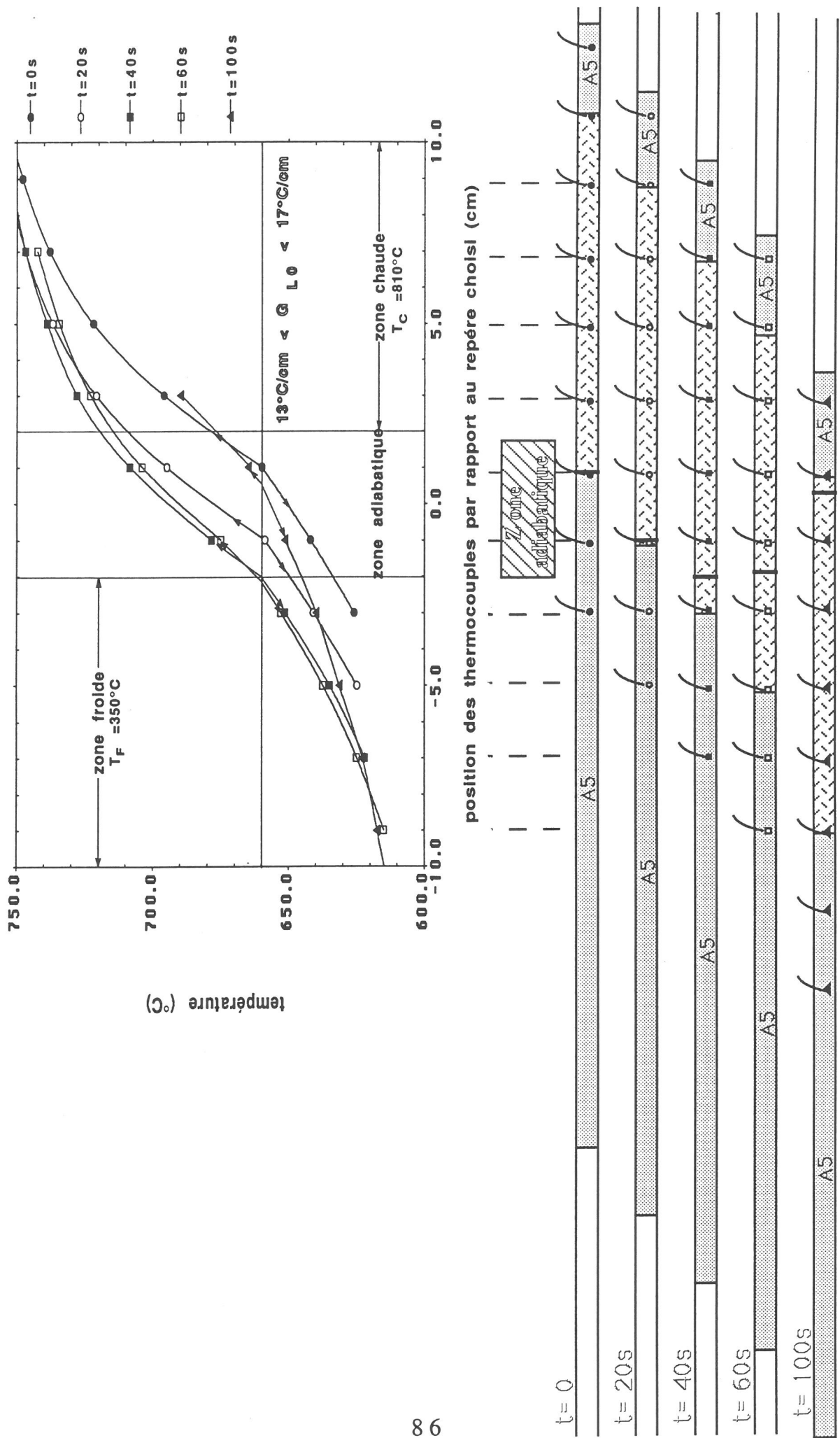
La température imposée, d'une part en zone chaude, d'autre part en zone froide, est ajustée de manière à (i) stabiliser, au début de la translation, le front de solidification en position 1 c'est à dire à l'extrémité inférieure de l'échantillon, (ii) pouvoir varier le gradient thermique dans le liquide au voisinage de l'interface S/L.

Par rapport au paragraphe 3.2.2.1, les couples  $(T_C, T_F)$  de température en zone chaude et froide permettant de disposer, au niveau du front de solidification, d'un gradient thermique faible ( $18^\circ\text{C}/\text{cm} > G_{L0} > 15^\circ\text{C}/\text{cm}$ ), intermédiaire ( $33^\circ\text{C}/\text{cm} > G_{L0} > 30^\circ\text{C}/\text{cm}$ ) ou fort ( $G_{L0} \approx 50^\circ\text{C}/\text{cm}$ ) restent inchangés. En effet, la position initiale (position 1) plus élevée du front de solidification par rapport à celle fixée dans le paragraphe précédent (position -1), est obtenue, non pas en diminuant le rapport  $T_F/T_C$  des températures imposées en zone froide et chaude mais en augmentant le rapport  $(L_{ZF}/L_{ZC})_0$  des longueurs de matériau en zone froide et chaude au début de l'expérience.

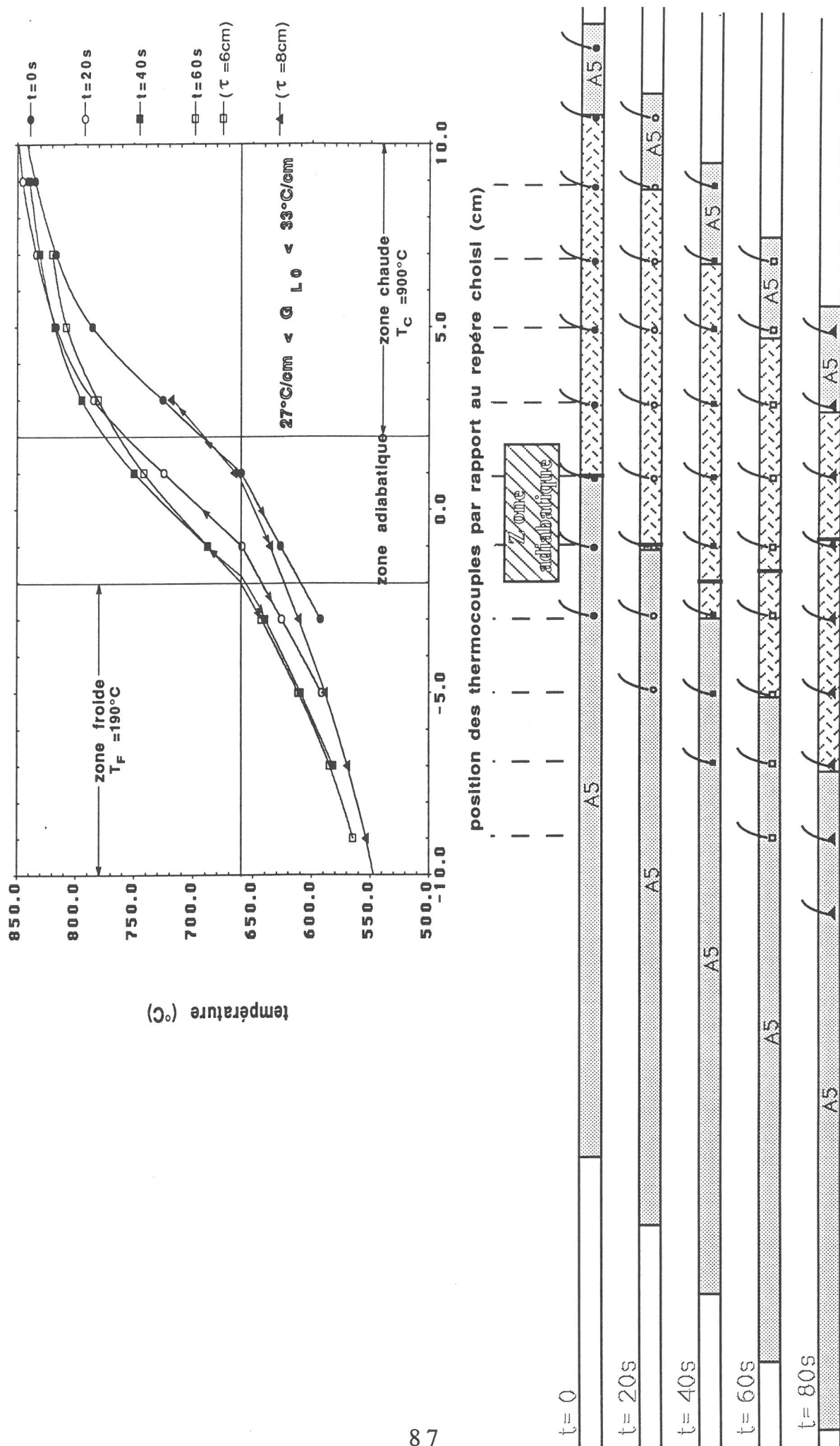
Pour chaque condition de température imposée en zone chaude et froide, l'évolution du profil thermique au sein de l'échantillon à vitesse de translation élevée ( $V_T=1000\mu\text{m/s}$ ) est représentée à chaque instant sur les figures III.14, III.15 et III.16 en fonction de la position du creuset. Chaque profil est obtenu après des translations successives du creuset de 2 cm correspondant aux temps intermédiaires suivants:  $t=20\text{s}$  ( $\tau=2$  cm),  $t=40\text{s}$  ( $\tau=4\text{cm}$ ),  $t=60\text{s}$  ( $\tau=6\text{cm}$ ),....

L'interpolation des points de haute et basse température, donne accès à une estimation (i) de la position de l'interface S/L, (ii) des gradients thermiques dans le liquide et le solide au voisinage du front de solidification après chaque translation du creuset de 2 cm. Cette estimation est, néanmoins, beaucoup moins fiable que dans le cas précédent puisqu'il est nécessaire de prendre en compte le rejet de chaleur latente de solidification à l'interface S/L dont l'influence est importante à vitesse de solidification élevée. Le rejet de chaleur à l'interface S/L

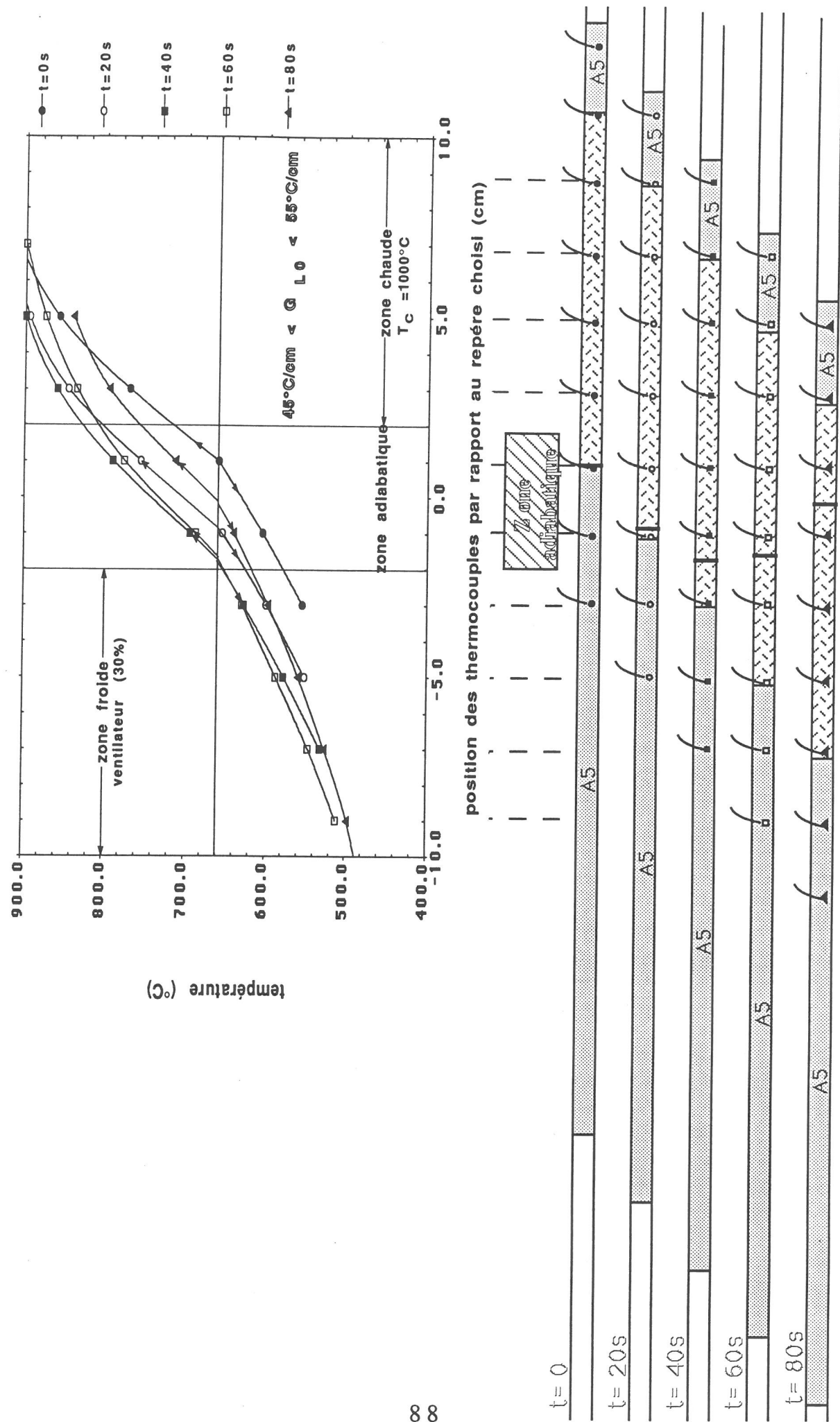




**Figure III.14:** Evolution du profil thermique au sein de l'échantillon en fonction du temps à vitesse de translation élevée du creuset ( $V_{\infty} = 1000 \text{ m/s}$ )



**Figure III.15:** Evolution du profil thermique au sein de l'échantillon en fonction du temps à vitesse de translation élevée du creuset ( $V_v = 1000 \mu\text{m/s}$ ).



**Figure III.16:** Evolution du profil thermique au sein de l'échantillon en fonction du temps à vitesse de translation élevée du creuset ( $V_y = 1000\mu\text{m/s}$ ).

N°	Nature du matériau composite	Fraction volumique de fibres	Vitesse de solidification $V_y$ ( $\mu\text{m/s}$ )	Gradient thermique dans le liquide au voisinage du front de solidification $G_{L0}$ ( $^{\circ}\text{C/m}$ )
1	A5/SiC (Nicalon)	1	1000	1500
2	"	1	1000	3000
3	"	1	1000	5000
4	"	1	10	1500
5	"	1	10	3000
6	"	1	10	5000
7	"	2	1000	1500
8	"	2	1000	3000
9	"	2	1000	5000
10	"	2	10	1500
11	"	2	10	3000
12	"	2	10	5000
13	"	5	1000	1500
14	"	5	1000	3000
15	"	5	1000	5000
16	"	5	10	1500
17	"	5	10	3000
18	"	5	10	5000
19	A5/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	1	1000	1500
20	"	1	1000	3000
21	"	1	1000	5000
22	"	1	10	1500
23	"	1	10	3000
24	"	1	10	5000
25	"	5	1000	1500
26	"	5	1000	3000
27	"	5	1000	5000
28	"	5	10	1500
29	"	5	10	3000
30	"	5	10	5000
31	A5/ C (P100)	2	1000	1500
32	"	2	1000	3000
33	"	2	1000	5000
34	"	2	10	1500
35	"	2	10	3000
36	"	2	10	5000
37	A5/SiC ( $\sigma$ )	1	1000	1500
38	"	1	1000	3000
39	"	1	10	1500
40	"	1	10	3000
41	A5/ B (W)	1	1000	1500
42	"	1	1000	3000
43	"	1	10	1500
44	"	1	10	3000

**Tableau III.6:** Synthèse des conditions de solidification appliquées à l'ensemble des matériaux élaborés.

conduit à une diminution locale du gradient thermique dans le liquide associée à une augmentation dans le solide au voisinage du front de solidification.

L'interpolation ne prenant pas en compte ce phénomène, les gradients thermiques obtenus graphiquement sont surestimés dans le liquide et sous-estimés dans le solide. De plus, la position du front de solidification se trouve décalée vers la partie haute de la zone adiabatique par rapport à la position réelle.

Les figures III.14, III.15 et III.16 montrent que (i) la position du front de solidification est beaucoup moins stable que dans le cas précédent, (ii) l'évolution des gradients thermiques dans le liquide et le solide en cours d'expérience est beaucoup plus sensible par rapport au cas précédent.

### 3.2.3 - Plan des manipulations:

Dans la mesure où l'objectif de ce travail concerne l'étude du comportement d'un renfort fibreux court au voisinage d'une interface solide/liquide plane ou quasi-plane, l'ensemble des matériaux élaborés comporte une faible fraction volumique de fibres courtes comprise entre  $V_F=1\%$  et  $V_F=5\%$ . Pour certains systèmes fibre/matrice, il nous a semblé intéressant de préparer des échantillons de fraction volumique variable de façon à étudier l'influence de ce paramètre sur le phénomène d'absorption ou de rejet.

En ce qui concerne les conditions de solidification, nous nous sommes fixés deux vitesses de translation (une plutôt élevée  $V_T=1000 \mu\text{m/s}$  et une plutôt faible  $V_T=10 \mu\text{m/s}$ ) et trois gradients thermiques  $G_{L0}$  dans le liquide au voisinage du front de solidification. Le tableau III.6 résume l'ensemble des expériences de solidification dirigée effectuées sur les cinq systèmes étudiés.

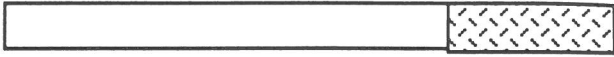



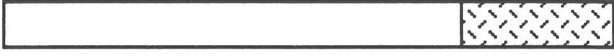











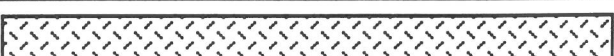
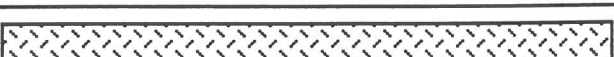

## 3.3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX:

Les résultats obtenus sur chacun des 44 matériaux traités sont proposés dans le tableau III.7. De façon à clarifier ces résultats, examinons séparément chaque système.

### 3.3.1 - Système A5/SiC (Nicalon) - (Figure III.17, III.18):









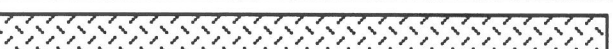
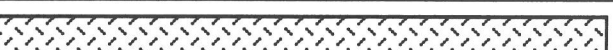
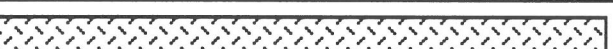
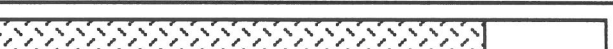
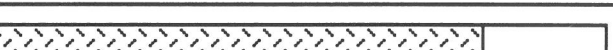


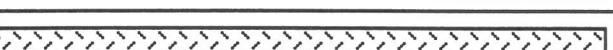
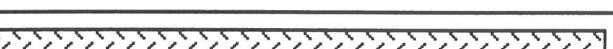
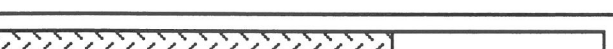
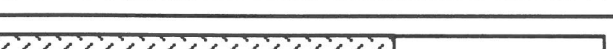
Dans le but d'étudier ce système, trois types de matériaux composites présentant des fractions volumiques de fibres égales à  $V_F=1\%$  (type 1),  $V_F=2\%$  (type 2) et  $V_F=5\%$  (type 3) ont été élaborés.

En ce qui concerne les matériaux de type 3 ayant fait l'objet d'un traitement de solidification dirigée, les fibres de carbure de silicium sont instantanément absorbées à l'image des résultats obtenus sur les échantillons 13 à 18, quelles que soient les conditions de solidification

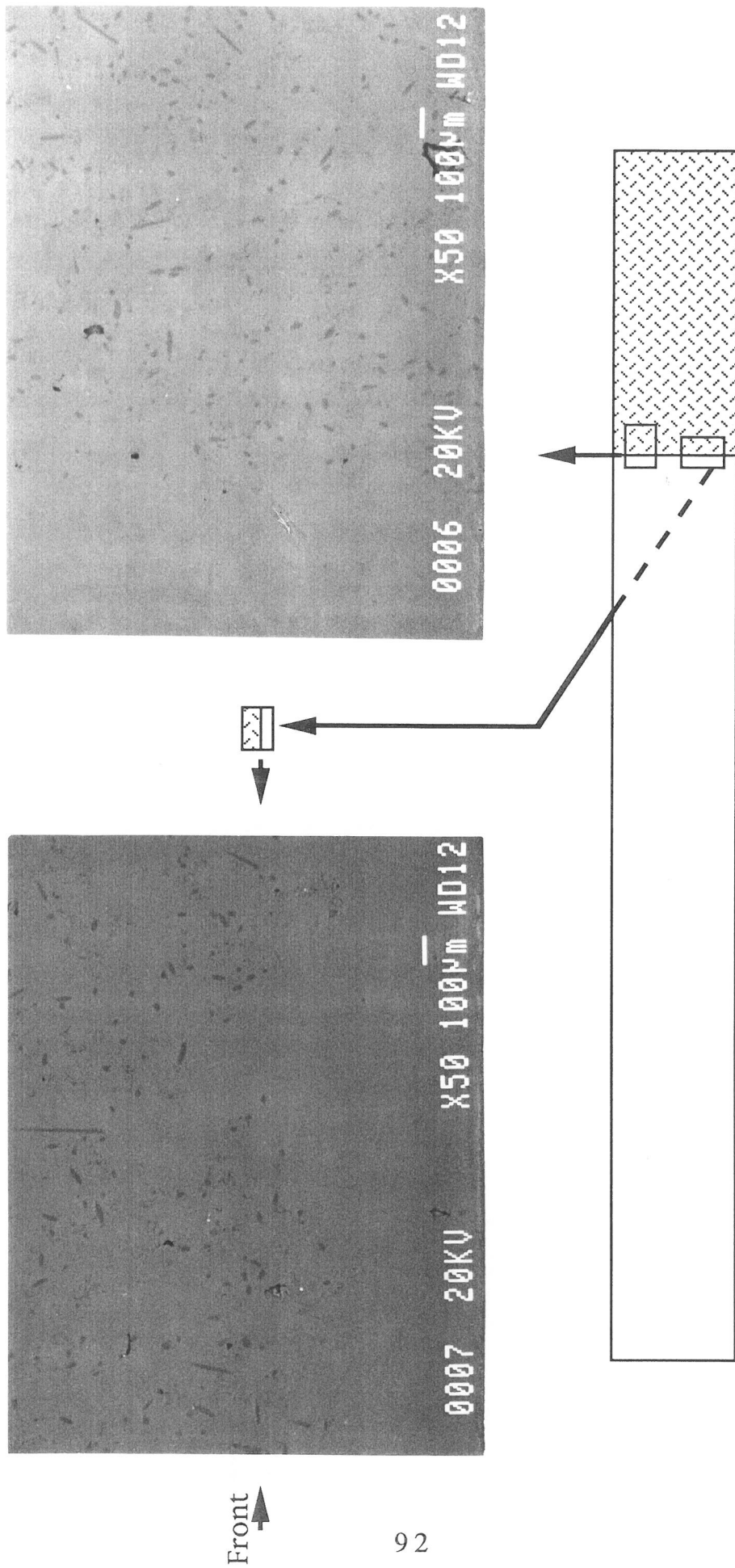
N°	Nature du matériau composite	Conditions de solidification		Résultats expérimentaux
		$V_y (\mu\text{m/s})$	$G_{L0} (^\circ\text{C/m})$	
1	A5/1% SiC (Nic)	1000	1500	
2	A5/1% SiC (Nic)	1000	3000	
3	A5/1% SiC (Nic)	1000	5000	
4	A5/1% SiC (Nic)	10	1500	
5	A5/1% SiC (Nic)	10	3000	
6	A5/1% SiC (Nic)	10	5000	
7	A5/2% SiC (Nic)	1000	1500	
8	A5/2% SiC (Nic)	1000	3000	
9	A5/2% SiC (Nic)	1000	5000	
10	A5/2% SiC (Nic)	10	1500	
11	A5/2% SiC (Nic)	10	3000	
12	A5/2% SiC (Nic)	10	5000	
13	A5/5% SiC (Nic)	1000	1500	
14	A5/5% SiC (Nic)	1000	3000	
15	A5/5% SiC (Nic)	1000	5000	
16	A5/5% SiC (Nic)	10	1500	
17	A5/5% SiC (Nic)	10	3000	
18	A5/5% SiC (Nic)	10	5000	
19	A5/1% AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (FP)	1000	1500	

**Tableau III.7:** Résultats des expériences de solidification dirigée pour chacun des cinq systèmes étudiés.



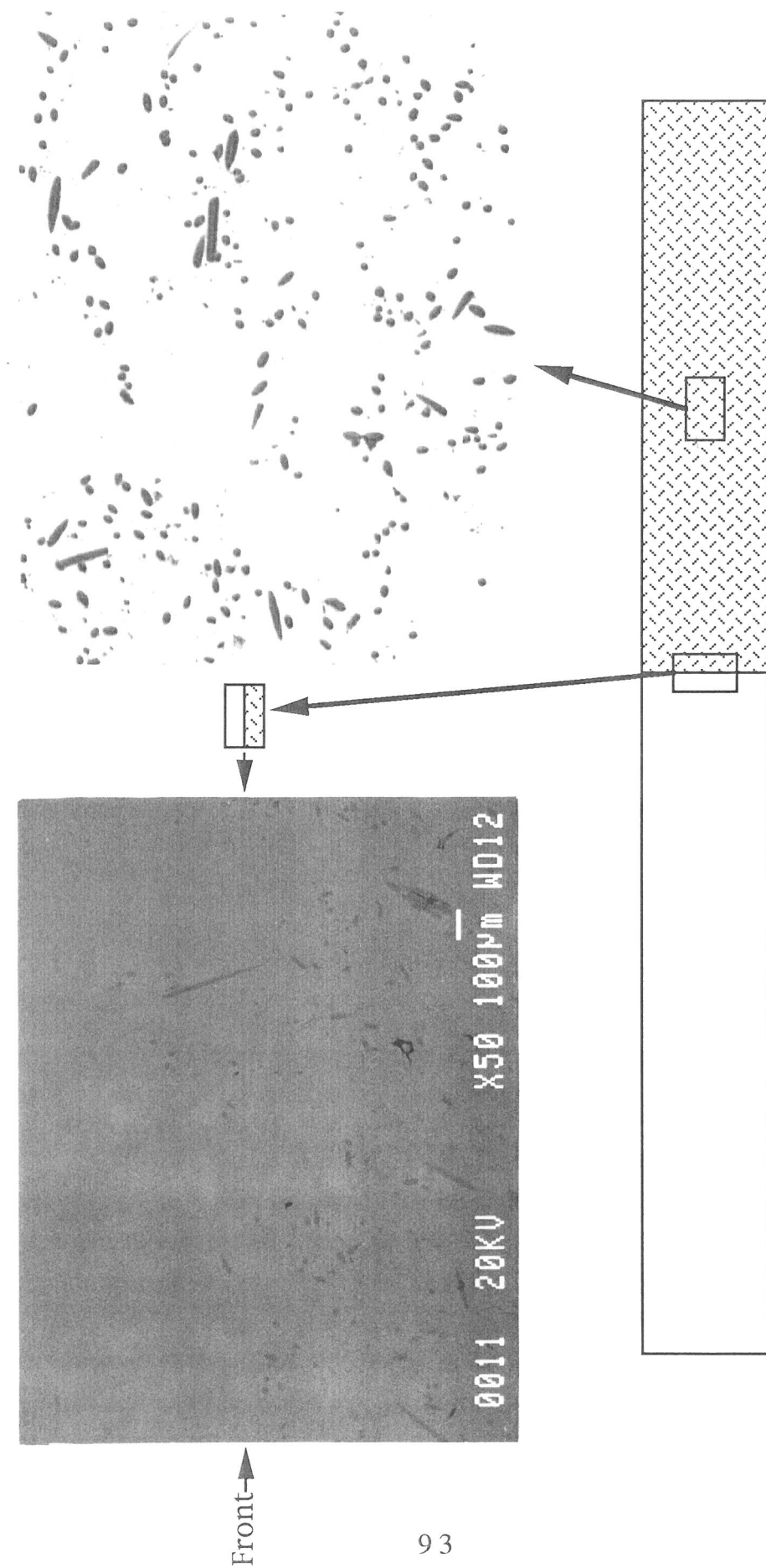
N°	Nature du matériau composite	Conditions de solidification		Résultats expérimentaux
		$V_y (\mu\text{m/s})$	$G_{LO} (^\circ\text{C/m})$	
20	A5/1% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	1000	3000	
22	A5/1% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	10	1500	
23	A5/1% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	10	3000	
25	A5/5% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	1000	1500	
26	A5/5% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	1000	3000	
28	A5/5% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	10	1500	
29	A5/5% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP)	10	3000	
31	A5/2% C (P100)	1000	1500	
32	A5/2% C (P100)	1000	3000	
34	A5/2% C (P100)	10	1500	
35	A5/2% C (P100)	10	3000	
37	A5/1% SiC ( $\sigma$ )	1000	1500	
38	A5/1% SiC ( $\sigma$ )	1000	3000	
39	A5/1% SiC ( $\sigma$ )	10	1500	
40	A5/1% SiC ( $\sigma$ )	10	3000	
41	A5/1% Bore (w)	1000	1500	
42	A5/1% Bore (w)	1000	3000	
43	A5/1% Bore (w)	10	1500	
44	A5/1% Bore (w)	10	3000	

**Tableau III.7(suite):** Résultats des expériences de solidification dirigée pour chacun des cinq systèmes étudiés.



**Figure III.17:** Représentation des zones d'absorption et de rejet après traitement de solidification dirigée sur l'échantillon n°1 comportant une fraction volumique initiale de fibres proche de 1%.





**Figure III.18:** Représentation des zones d'absorption et de rejet après traitement de solidification dirigée sur l'échantillon n°10 comportant une fraction volumique initiale de fibres proche de 2%.

choisies ( A titre de remarque, précisons que la fraction volumique de fibres demeure quasi-homogène et voisine de  $V_F=5\%$  après traitement).

Les matériaux de type 1 et 2 se caractérisent dans un premier temps, par un phénomène de rejet sur une longueur d'échantillon variable dépendant de la fraction volumique de départ, des conditions de solidification et dans un second temps par un phénomène d'absorption.

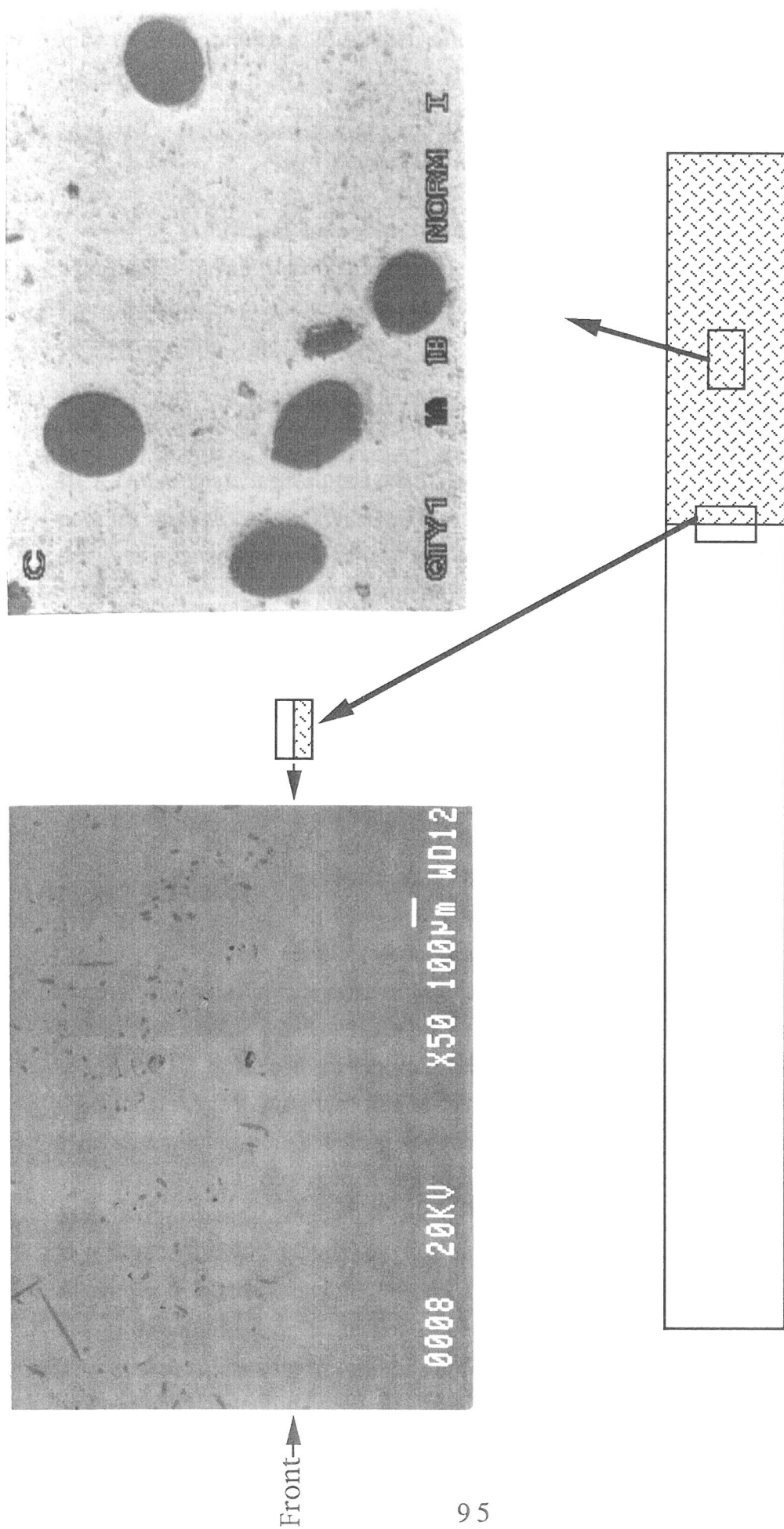
Les matériaux composites présentant une fraction volumique de fibres proche de  $V_F=1\%$  (échantillon n°1 à 6) mettent en évidence après traitement de solidification dirigée, un phénomène de rejet sur les trois premiers quarts de l'échantillon, le dernier contenant alors l'ensemble des fibres se trouvant au sein de l'échantillon avant l'expérience de solidification dirigée. Ces proportions peuvent varier en fonction des conditions expérimentales et notamment de la vitesse de croissance. Ainsi, les échantillons solidifiés à vitesse élevée (éch n°1 à 3) révèlent un domaine de rejet légèrement moins important que ceux traités à faible vitesse de solidification (éch n°4 à 6). Dans les deux cas, la fraction volumique de fibres au sein du domaine d'absorption est supposée quasi-homogène et avoisine 4% suite au calcul du rapport entre les sections de fibres et de la matrice sur les clichés obtenus par microscopie optique. La difficulté associée à l'estimation des frontières entre la fibre et la matrice pour de très faibles grandissements n'autorise pas de plus amples commentaires sur l'homogénéité de la fraction volumique dans le domaine absorbé.

Les matériaux composites présentant une fraction volumique de fibres courtes de 2% (éch n°7 à 12) témoignent, après traitement de solidification dirigée, d'un phénomène de rejet sur la première moitié de l'échantillon suivi d'un phénomène d'absorption. Par analogie au cas précédent, ces proportions varient en fonction de la vitesse de solidification puisque le domaine d'absorption est d'autant plus important que la vitesse de translation augmente (comparaison des échantillons n°7,8,9 et 10,11,12). Pour l'ensemble des échantillons n°7 à 12, la fraction volumique au sein du domaine absorbé est, pour des raisons similaires au cas précédent, supposée quasi-homogène autour de  $V_F=4\%$ .

### 3.3.2 - Système A5/alumine (FP) - (Figure III.19) :

L'étude de ce système a été réalisée en effectuant des traitements de solidification dirigée sur deux types de matériaux présentant des fractions volumiques de fibres égales à  $V_F=1\%$  (type 1) et  $V_F=5\%$  (type 2).

A fraction volumique de fibres et conditions de solidification similaires, le comportement des renforts fibreux de SiC(Nicalon) et alumine(FP) semble quasiment équivalent exception faite de l'étendue de la zone de rejet pour les matériaux de type 1. En effet, le domaine sur lequel les fibres sont rejetées s'étend, suivant les conditions de solidification, sur près des deux tiers de l'échantillon et s'avère donc inférieur à celui observé pour un composite A5/SiC(Nicalon) où il occupe à peu près les trois quarts de l'échantillon. Cette observation est vérifiée en comparant le comportement de deux types de renforts au sein des échantillons n°1 et 19, 2 et 20, 4 et 22, 5 et 23 (Tableau III.7).



**Figure III.19:** Représentation des zones d'absorption et de rejet après traitement de solidification dirigée sur l'échantillon n°19 comportant une fraction volumique initiale de fibres proche de 1%.

En ce qui concerne les matériaux de type 2, une absorption instantanée des fibres, analogue à celle observée pour le matériau de type 3 du système A5/SiC(Nicalon), a été mise en évidence (éch n°25 à 29) en conséquence de quoi il n'est pas nécessaire de s'attarder sur ce système.

### 3.3.3 - Système A5/carbone (P100) - (Figure III.20) :

Etant donnée la difficulté associée à l'élaboration de ce type de composites, nous avons décidé de préparer un matériau de fraction volumique avoisinant  $V_F=2\%$ , d'en faire l'étude puis de décider, compte tenu des résultats obtenus, de l'intérêt d'élaborer un matériau composite de fraction volumique différente.

Après traitement de solidification dirigée, aucun domaine de rejet n'apparaît sur les échantillons n°31 à 35 traités suivant les conditions expérimentales spécifiées dans le tableau III.7. D'autre part, les résultats relatifs au système A5/carbone (P100) équivalent à ceux observés pour les systèmes A5/SiC(Nicalon) et A5/alumine (FP) bien que les fractions volumiques initiales de fibres soient plus élevées ( $V_F=5\%$ ).

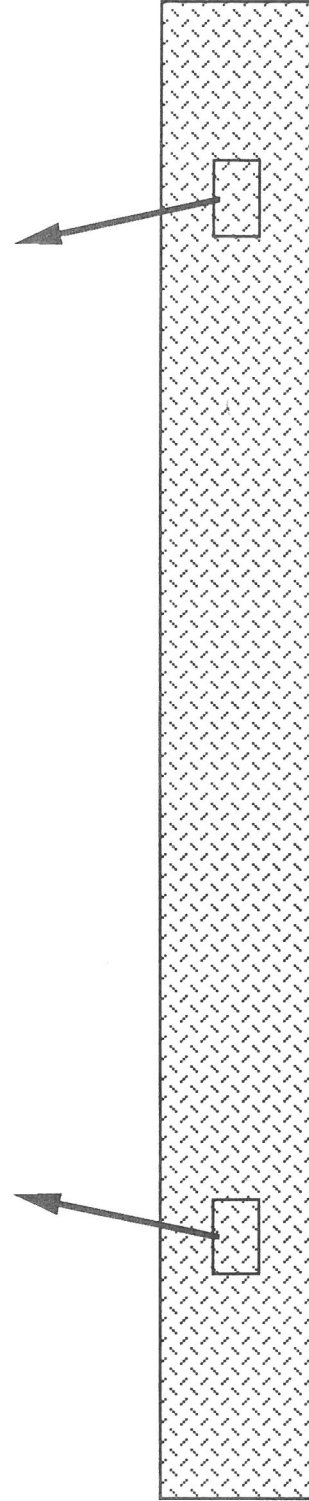
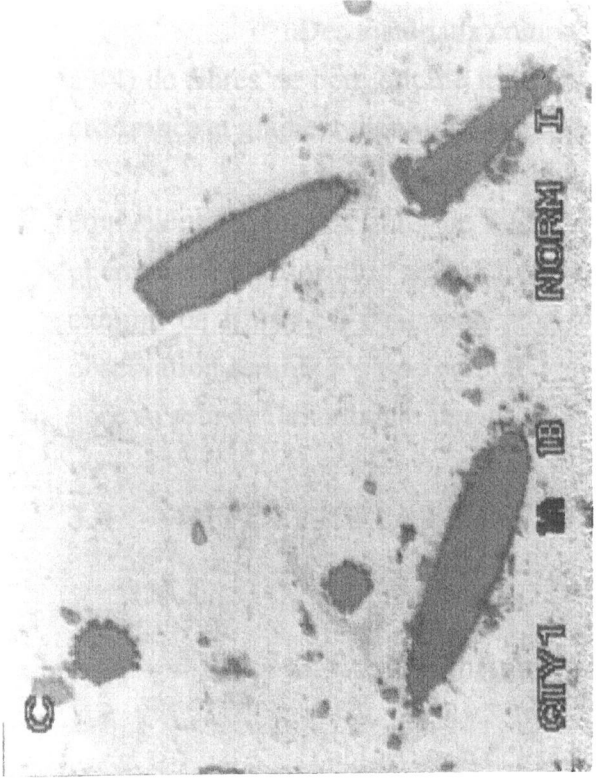
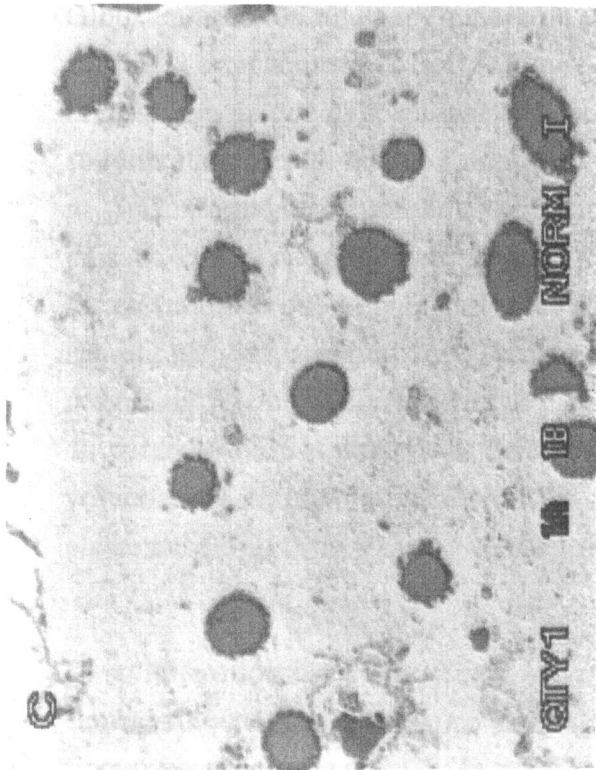
Dans le but de mettre en évidence un phénomène mixte rejet/absorption pour le système A5/carbone, il s'avère nécessaire d'élaborer un matériau composite de fraction volumique plus faible, par exemple de l'ordre de 1%. Or, en dessous d'une fraction volumique de 2%, la méthode consistant à imprégner une préforme conduit à un matériau composite dont la fraction volumique, avant traitement de solidification dirigée, n'est pas suffisamment homogène pour que des conclusions satisfaisantes soient tirées à l'issue de l'étude d'un tel matériau.

### 3.3.4 - Système A5/SiC ( $\sigma$ ) - (Figure III.21) :

Les résultats obtenus après solidification dirigée de matériaux composites de fraction volumique initiale égale à  $V_F=1\%$  (éch n°37 à 40) révèlent un phénomène d'absorption des fibres courtes dès le début de l'échantillon quelles que soient les conditions expérimentales.

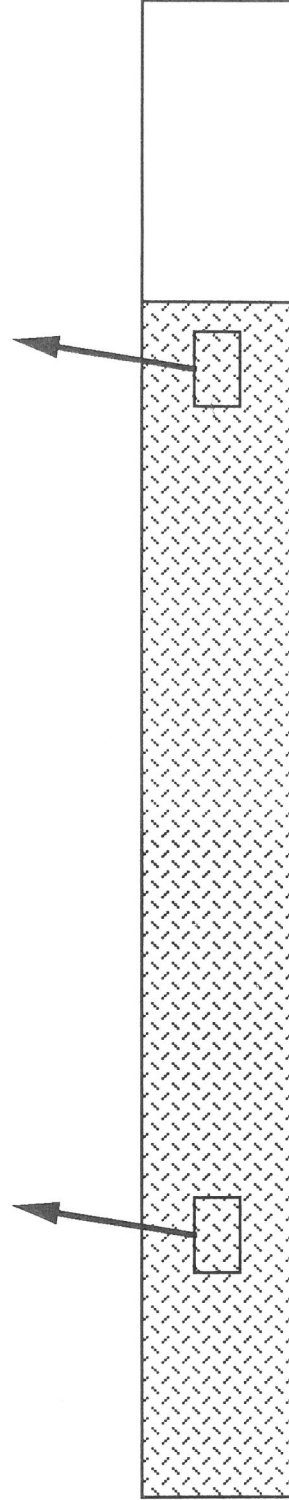
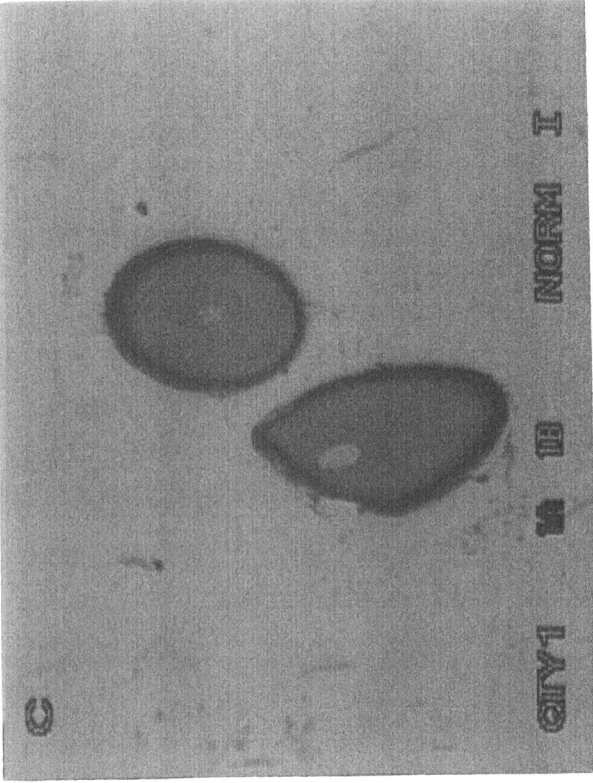
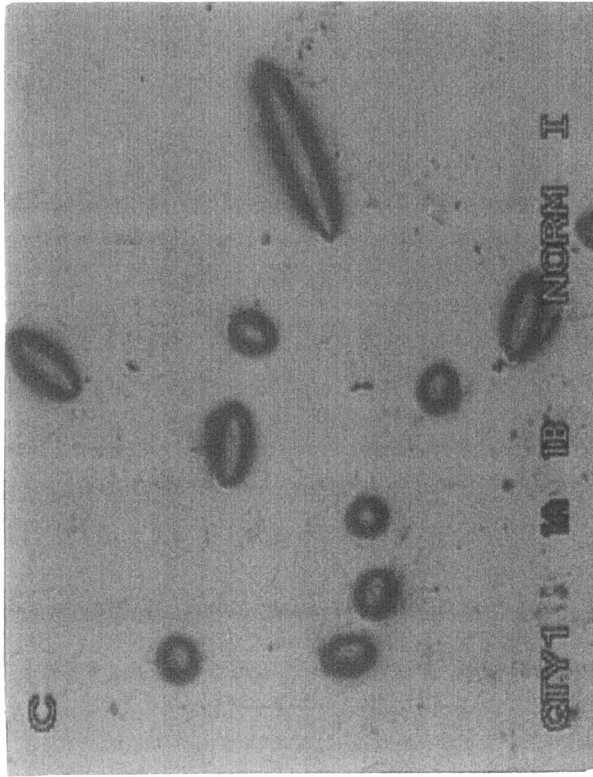
Ce comportement, quasi-similaire à celui observé pour les systèmes A5/5%SiC (Nicalon), A5/5% alumine (FP) et A5/2%carbone solidifiés dans des conditions identiques, apparaît cependant pour une fraction volumique plus faible égale à  $V_F=1\%$ .

L'observation des résultats permet néanmoins de faire une légère distinction entre le comportement du renfort étudié et celui des trois autres cités précédemment. En effet, pour le système A5/SiC ( $\sigma$ ), une absence de fibres apparaît en fin d'échantillon sur une longueur dépendant de la vitesse de solidification. Le domaine en question est d'autant plus important que la vitesse de solidification est faible. Ce phénomène ne peut en aucun cas être attribué au rejet des fibres puisqu'elles sont absorbées en début d'échantillon; mais s'expliquerait plutôt par une sédimentation du renfort.



**Figure III.20:** Représentation des zones d'absorption et de rejet après traitement de solidification dirigée sur l'échantillon n°28 comportant une fraction volumique initiale de fibres proche de 2%.





**Figure III.21:** Répartition du filament de carbure de silicium( $\sigma$ ) au sein du barreau après traitement de solidification dirigée sur l'échantillon n°37.

### 3.3.5 - Système A5/Bore(W) - (Figure III.22) :

Des matériaux composites comportant une fraction volumique  $V_F=1\%$  (éch n°41 à 44) de fibres de bore ont été traité par solidification dirigée dans des conditions de vitesse de croissance et gradient thermique identiques à celles employées pour le système précédent.

Le comportement du renfort fibreux au niveau de l'interface S/L semble équivalent à celui des fibres de SiC( $\sigma$ ) pour des conditions expérimentales similaires puisque le phénomène d'absorption apparaît également dès le début de l'échantillon. En outre, le domaine exempt de fibres est beaucoup plus réduit pour ce système par rapport au précédent. Cette observation semble logique compte tenu des vitesses de sédimentation plus faibles des fibres de bore au sein de l'aluminium liquide.

## 3.4 - INTERPRETATION DES RESULTATS:

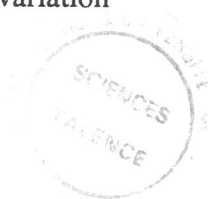
### 3.4.1 - Influence des conditions de solidification:

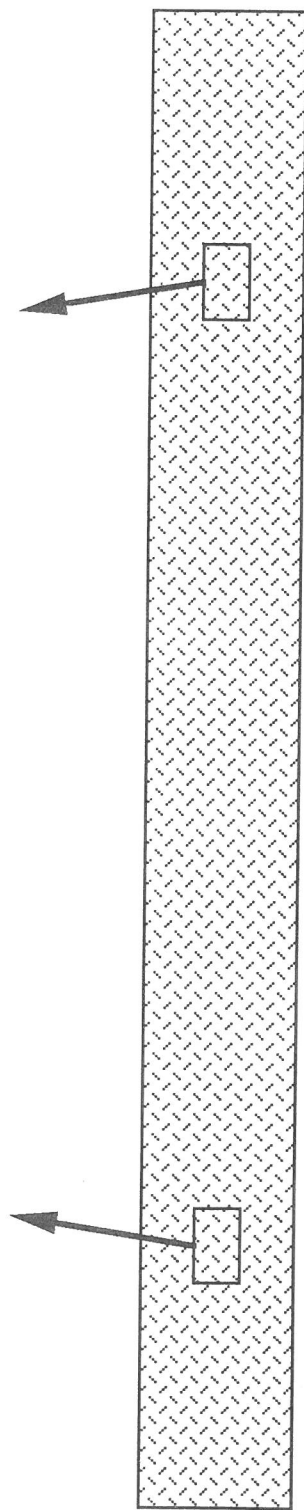
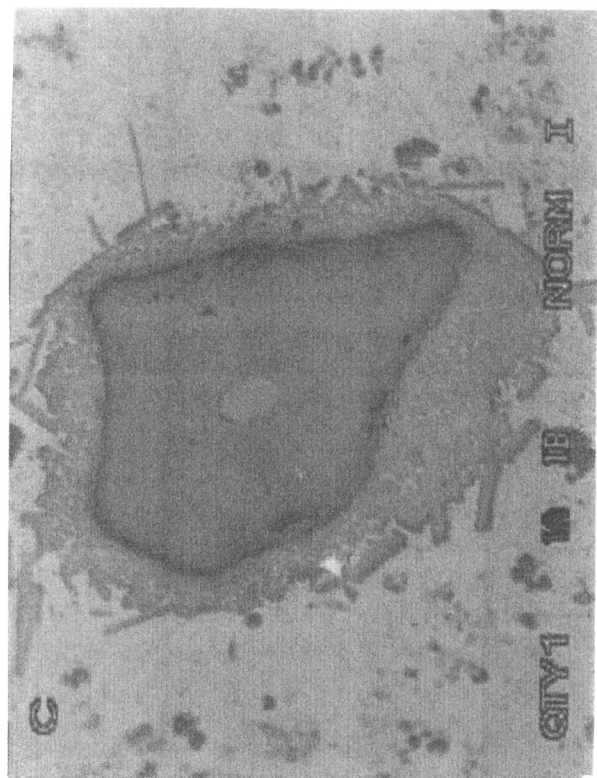
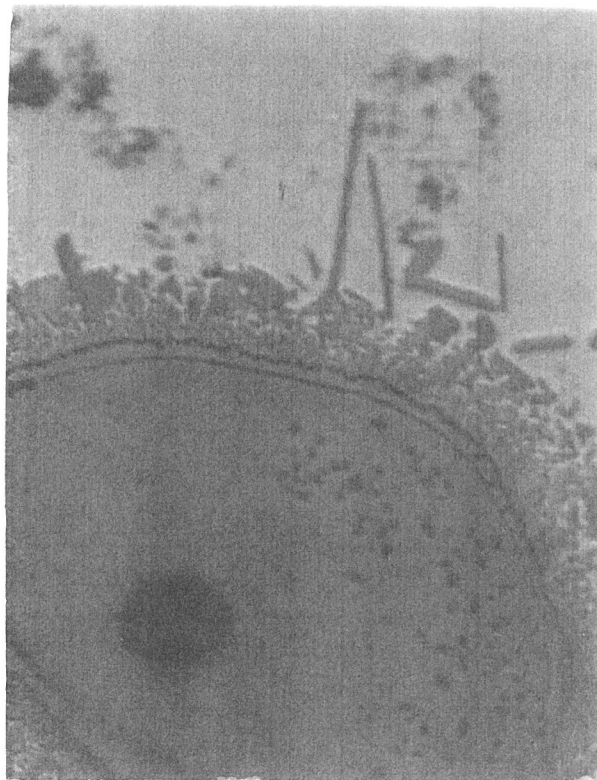
#### 3.4.1.1 - Influence de la vitesse de croissance $V_y$ :

L'observation des résultats expérimentaux montre une absorption préférentielle du renfort fibreux aux vitesses de solidification élevées telle que le laisse apparaître la comparaison entre les échantillons n°1 et 4, 2 et 5 ou 3 et 6 par exemple (Tableau III.7).

Considérons dans un premier temps l'échantillon n°1: Au début de l'expérience de solidification dirigée à vitesse de solidification élevée, les conditions expérimentales et les caractéristiques physiques du système A5/SiC sont telles que l'allure de la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation du front de solidification (Figure III.23-courbe 1) s'apparente au cas n°3 (Figure III.24). Si l'on se réfère à la courbe 1, la seule condition nécessaire pour que se développe au début de l'expérience un phénomène d'absorption à vitesse de solidification élevée, est que l'amplitude  $y$  de la perturbation soit supérieure à l'amplitude critique  $y_{\max}$ . Conformément aux résultats obtenus sur l'échantillon n°1, cette condition n'est pas satisfaite puisque le front de solidification rejette le renfort de carbure de silicium en début d'expérience. Au fur et à mesure que le phénomène de rejet se développe jusqu'au trois quarts de l'échantillon, l'amplitude  $y$  de la perturbation demeure inférieure à  $y_{\max}$ . Dans le même temps, l'augmentation progressive de la fraction volumique au niveau du front de solidification conduit à une diminution du paramètre  $C_1$  et donc de la perturbation critique  $y_{\max}$  (Figure III.25). Lorsque la fraction volumique à l'interface S/L atteint 4%, l'amplitude  $y$  de la perturbation équivaut à  $y_{\max}$  et le phénomène d'absorption peut se développer sur le dernier quart de l'échantillon.

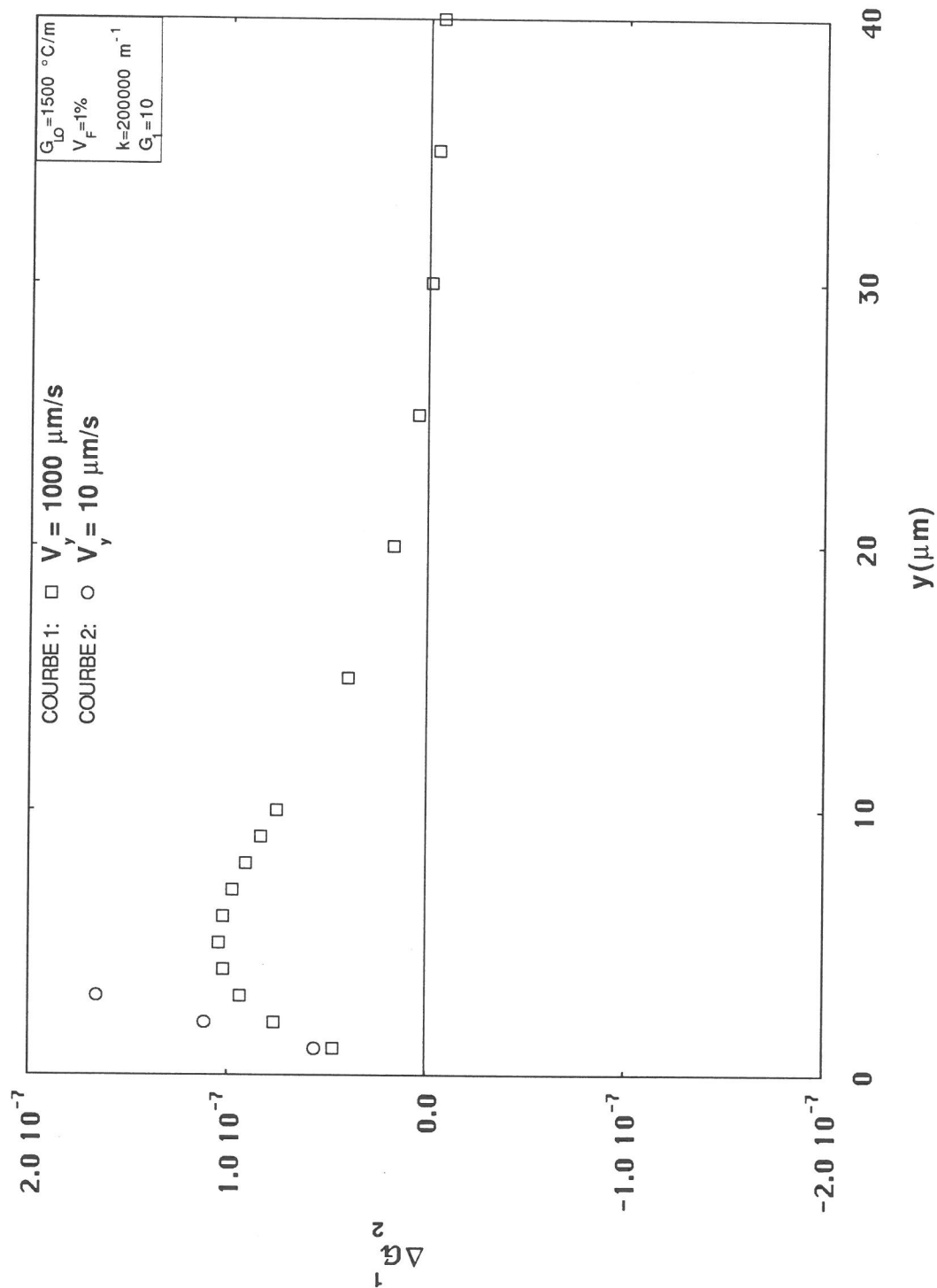
Considérons dans un second temps l'échantillon n°4: Au début de l'expérience de solidification dirigée à faible vitesse de solidification, les conditions expérimentales et les caractéristiques physiques du système A5/SiC sont telles que le comportement théorique du renfort fibreux est régi par le cas n°4 (Figure III.23-courbe 2). A l'image de la courbe 2, la variation



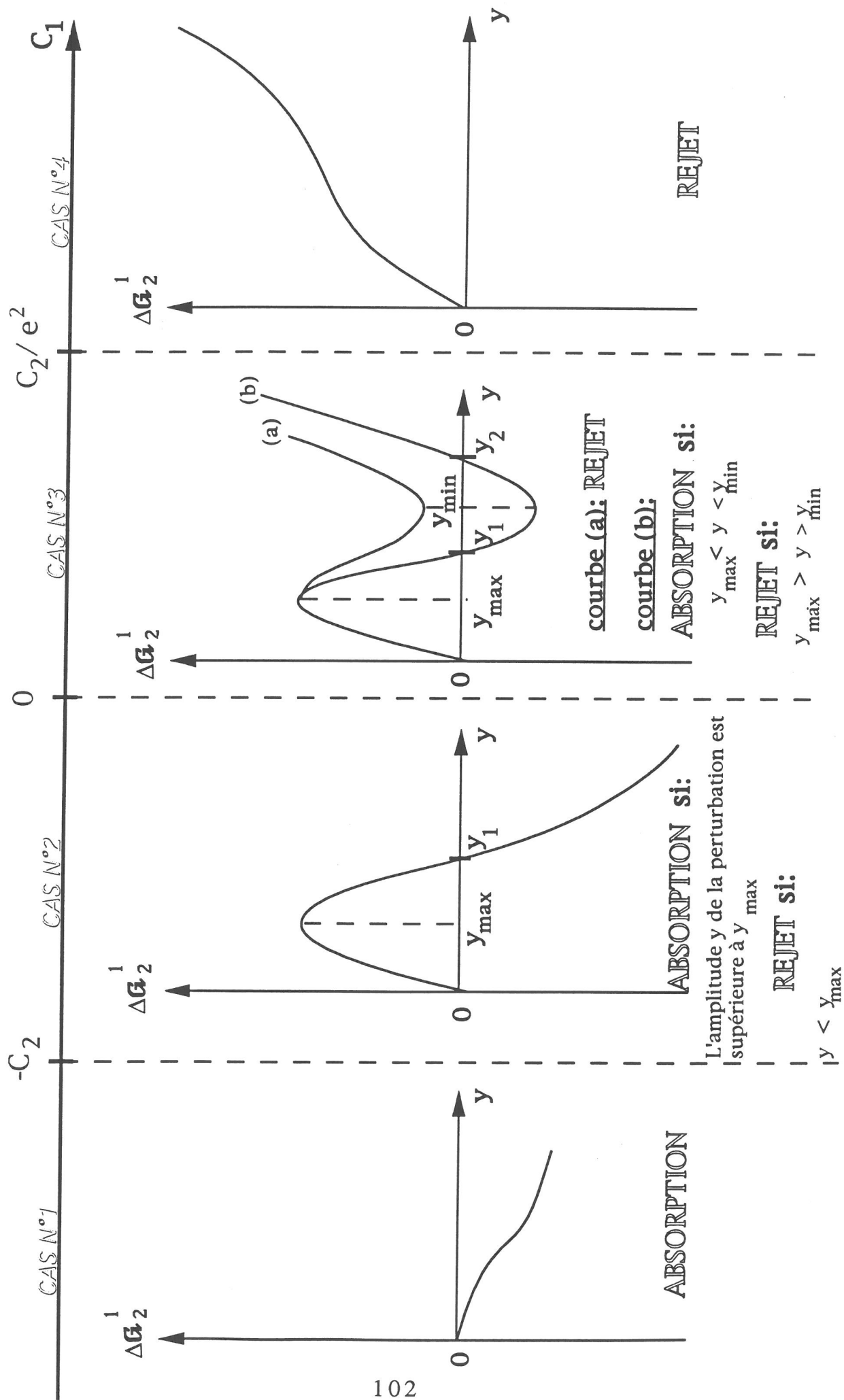


**Figure III.22:** Répartition du filament de bore(W) au sein du barreau après traitement de solidification dirigée sur l'échantillon n°41.

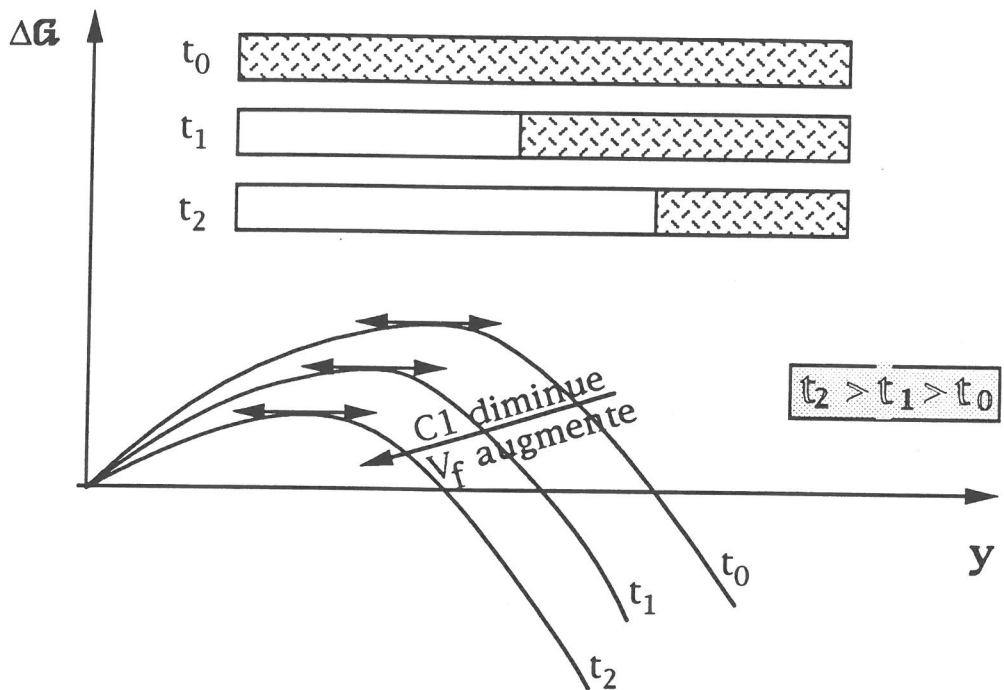




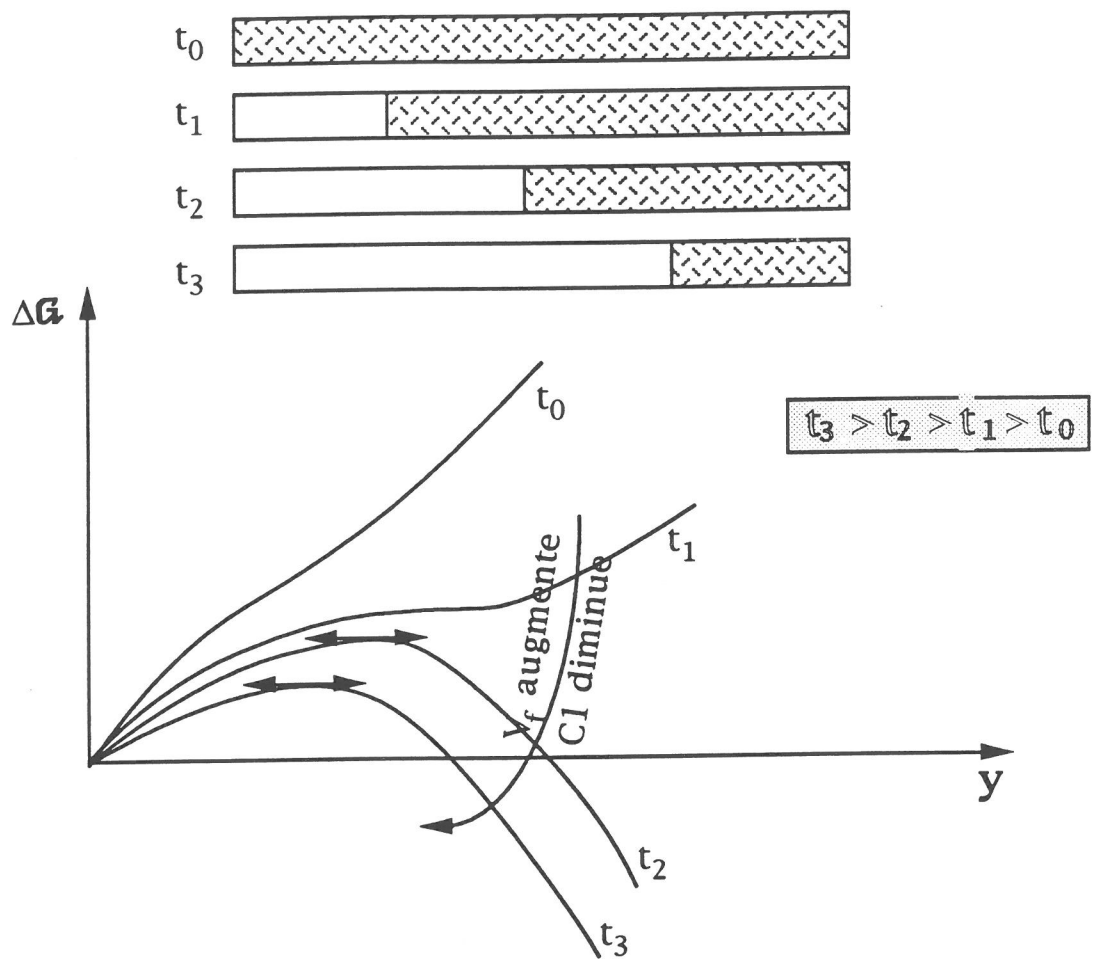
**Figure III.23:** Variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation et de la vitesse  $V_y$  de solidification concernant le système A5/SiC(Nic).



**Figure III.24:** Synthèse des divers cas résultant de l'interaction d'un renfort fibreux court avec une interface S/L.



**Figure III.25:** Evolution des courbes  $\Delta G=f(y)$  à vitesse de solidification élevée lorsque la fraction volumique de fibres augmente au niveau de l'interface S/L.



**Figure III.26:** Evolution des courbes  $\Delta G = f(y)$  à faible vitesse de solidification lorsque la fraction volumique de fibres augmente au niveau de l'interface S/L.

d'énergie de Gibbs est positive quelle que soit l'amplitude  $y$  de la perturbation. Dans ce cas, le modèle prévoit un phénomène de rejet en début d'expérience, prédiction en accord avec le comportement du renfort de carbure de silicium au sein de l'échantillon n°4. Au fur et à mesure que le rejet des fibres se développe sur plus des trois quarts de l'échantillon, la fraction volumique augmente au niveau du front de solidification. Il s'en suit que le terme lié aux efforts augmentant,  $C_1$  diminue et le modèle évolue progressivement vers le cas n°3 (Figure III.26). Lorsque la fraction volumique au niveau du front de solidification atteint une valeur légèrement supérieure à 4%, l'amplitude  $y$  de la perturbation équivaut à  $y_{\max}$  et le phénomène d'absorption peut se développer dans la partie finale de l'échantillon.

La comparaison entre les courbes des figures III.25 et III.26 nous indique que l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation critique atteint des valeurs faibles d'autant plus rapidement que la vitesse de solidification est élevée. Par conséquent, le phénomène d'absorption est susceptible de se développer d'autant plus tôt que la vitesse de solidification est élevée.

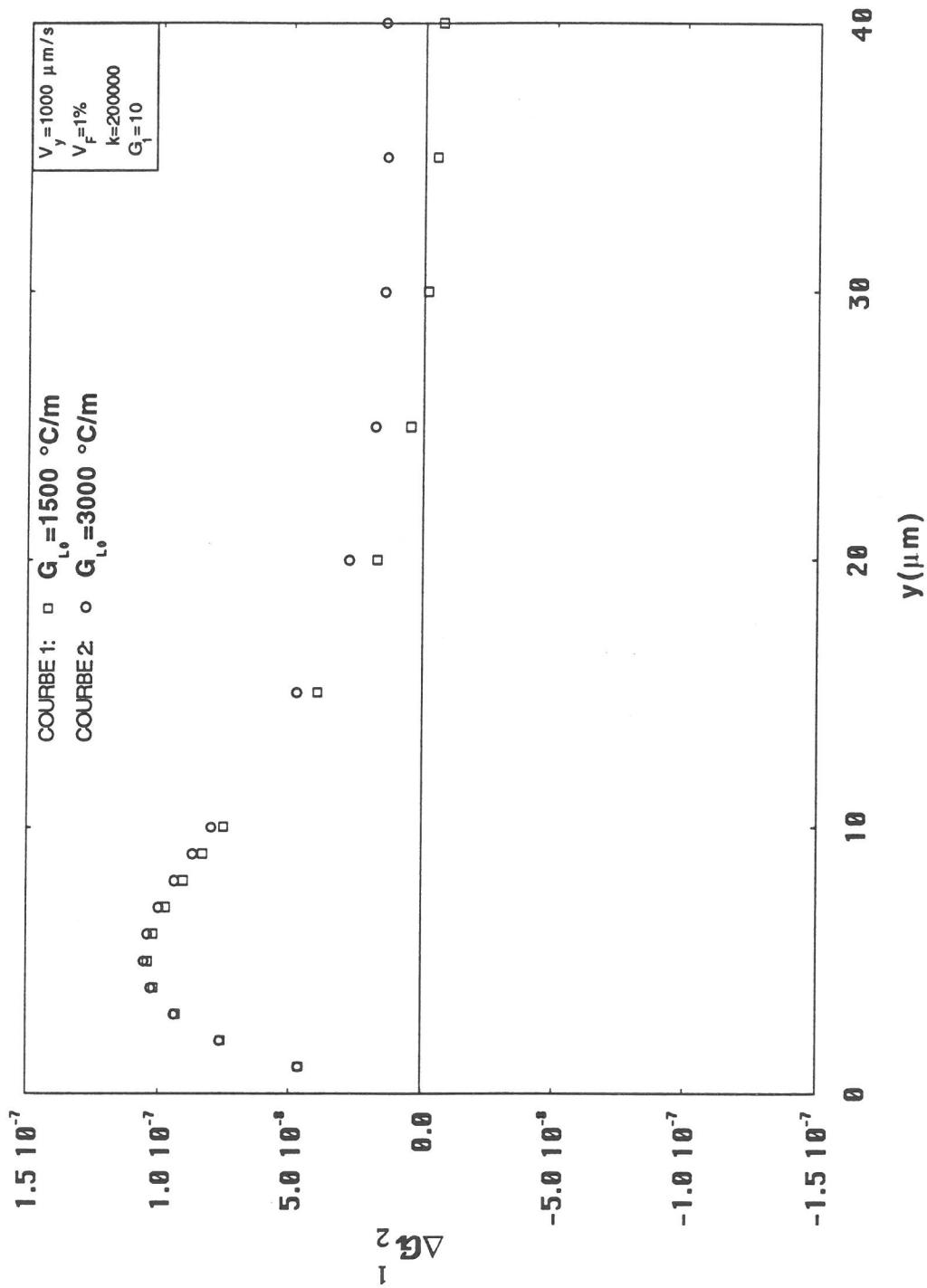
Par l'intermédiaire du modèle de comportement, il est possible de proposer l'existence d'une vitesse critique d'absorption en dessous de laquelle le renfort est rejeté. Elle correspond à la vitesse permettant d'accéder au cas n°3 lorsque l'amplitude  $y$  de la perturbation est telle que  $y_{\max} < y < y_{\min}$ . Elle dépend entre autres des conditions de solidification, des caractéristiques physiques et géométriques du renfort étudié et est inversement proportionnelle à la fraction volumique de fibres.

En ce qui concerne le système A5/1% SiC(Nic), l'existence d'un phénomène de rejet en début d'expérience permet de conclure que la vitesse critique d'absorption est supérieure à 1000  $\mu\text{m/s}$  quelles que soient les conditions de solidification. Dès lors que la fraction volumique  $V_F$  de fibres augmente au niveau du front de solidification, la vitesse critique  $V_{cr}$  d'absorption diminue pour atteindre 1000  $\mu\text{m/s}$  lorsque  $V_F=4\%$  (échantillon n°1,2 et 3) puis 10  $\mu\text{m/s}$  lorsque la fraction volumique est légèrement supérieure à 4% (échantillon n°4,5 et 6).

Si l'on considère un matériau comportant 2% de fibres de carbone(P100) solidifié dans des conditions telles que celles utilisées pour les échantillons n°31 à 35, il apparaît que la vitesse critique d'absorption est inférieure à 10  $\mu\text{m/s}$  à l'image des résultats obtenus sur les échantillons n°34 et 35.

Une conclusion similaire s'applique aux échantillons comportant 1% de filament de SiC( $\sigma$ )(éch n°39 et 40) ou de bore(éch n°43 et 44) pour lesquels le phénomène d'absorption se développe dès le début du traitement de solidification dirigée.

Le modèle de comportement permet d'expliquer qualitativement les résultats obtenus sur les échantillons n°1 à 6. En revanche, l'influence de la fraction volumique par l'intermédiaire de l'effort de compression, est trop modeste pour fournir une approche quantitative correcte du phénomène.



**Figure III.27:** Variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation et du gradient thermique  $G_{L0}$  à l'interface S/L concernant le système A5/SiC(Nic).

#### 3.4.1.2 - Influence du gradient thermique $G_{L0}$ :

L'influence du gradient thermique  $G_{L0}$  dans le liquide à l'égard du phénomène d'absorption n'est guère mise en évidence à la lumière des résultats expérimentaux.

En effet, si l'on compare le comportement des fibres de carbure de silicium(Nicalon) au sein des échantillons n°1,2 et 3 caractérisés par des gradients thermiques  $G_{L0}$  croissants, le phénomène d'absorption succède au phénomène de rejet pour une même fraction volumique critique proche de 4%.

Il en est de même lorsque l'on considère les échantillons n°19 et 20 d'une part, 22 et 23 d'autre part, pour lesquels l'influence du gradient thermique  $G_{L0}$  à l'égard de l'absorption des fibres d'alumine FP semble négligeable.

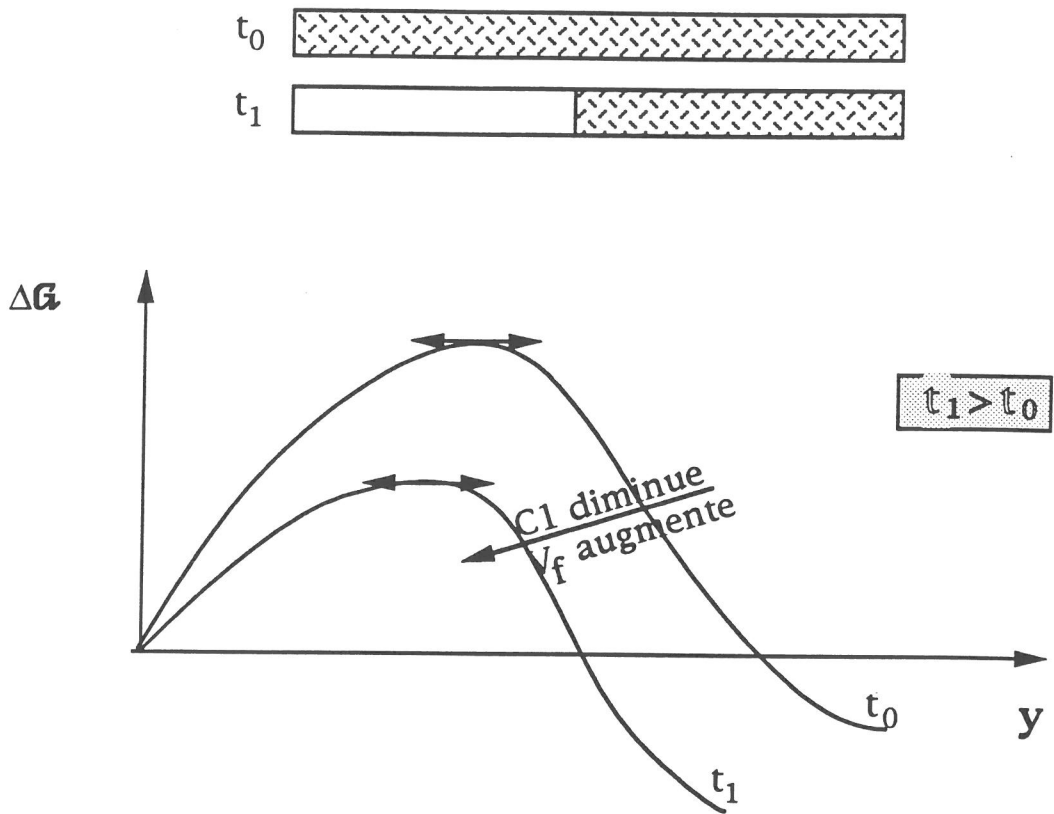
Le modèle de comportement permet de déterminer l'influence du gradient thermique  $G_{L0}$  en consultant la figure III.27 représentant la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation. Les courbes 1 et 2 reportées sur cette figure présentent une allure similaire à celle caractérisant le cas n°3.

En ce qui concerne la courbe 1, la seule condition nécessaire pour que le phénomène d'absorption puisse se développer, sous faible gradient thermique dès le début de l'expérience de solidification dirigée, est que l'amplitude  $y$  de la perturbation soit telle que  $y_{\max} < y < y_{\min}$ . Si l'on considère l'échantillon n°1, cette condition n'est pas satisfaite au début de l'expérience. En conséquence, le phénomène de rejet qui se développe, conduit à une augmentation de la fraction volumique à l'interface S/L entraînant une diminution du paramètre  $C_1$  et un abaissement de l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation critique (Figure III.28). Dès lors que l'amplitude  $y$  de la perturbation atteint  $y_{\max}$ , le phénomène d'absorption peut se développer.

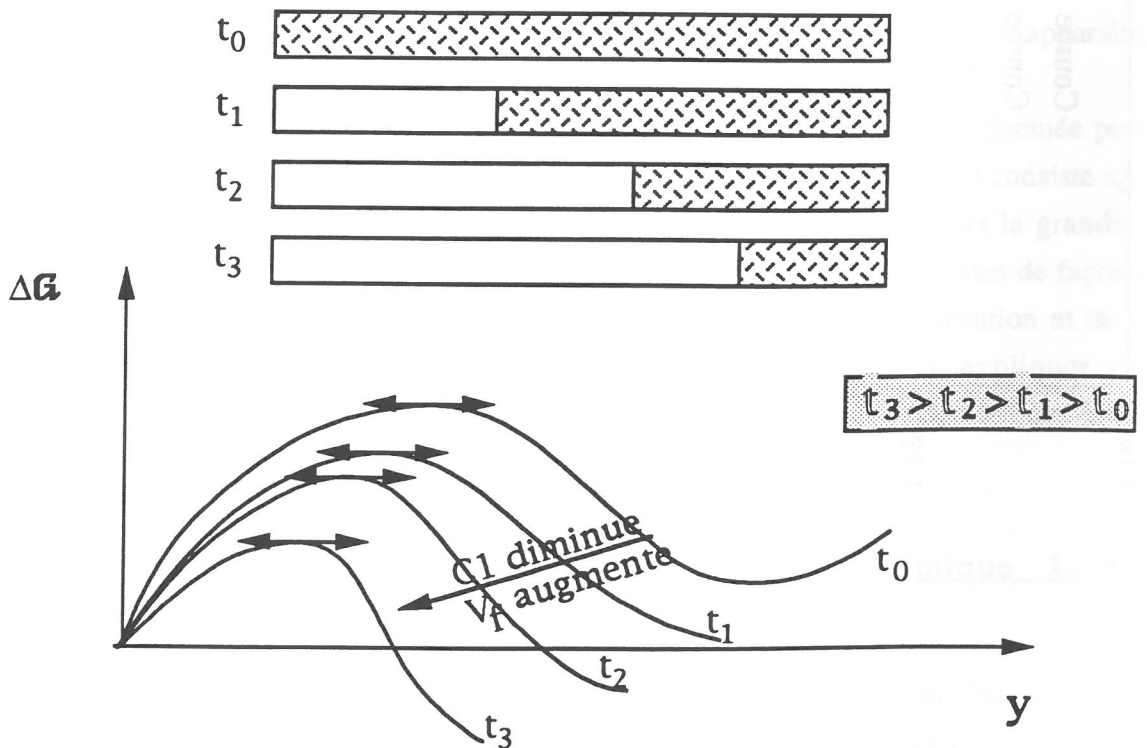
L'allure de la courbe 2 nous indique qu'il n'y a aucun espoir d'absorption sous gradient thermique élevé dès le début de l'expérience de solidification dirigée, puisque la variation d'énergie de Gibbs est positive quelle que soit l'amplitude de la perturbation. De façon à se rapprocher des conditions favorisant le phénomène d'absorption, il faut absolument que se développe, au début de l'expérience, un phénomène de rejet pour que le paramètre  $C_1$  diminue et devienne négatif(cas n°2). Cette condition satisfaite, le phénomène d'absorption peut alors se développer uniquement dans le cas où l'amplitude  $y$  de la perturbation est supérieure à  $y_{\max}$  (Figure III.29).

Il semble prévisible, à la lumière des commentaires précédents, que les conditions permettant d'accéder au phénomène d'absorption sont beaucoup plus difficiles à atteindre lorsque l'expérience de solidification dirigée s'effectue sous gradient thermique élevé à l'interface S/L. Par conséquent, le modèle de comportement prévoit une absorption du renfort d'autant plus aisée que le gradient thermique à l'interface S/L est faible.

Du point de vue expérimental, l'analyse des résultats proposée en début de paragraphe conclut à une influence négligeable du gradient thermique à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet. Il semble donc légitime de s'interroger sur les divergences entre les prédictions du modèle et les résultats expérimentaux.

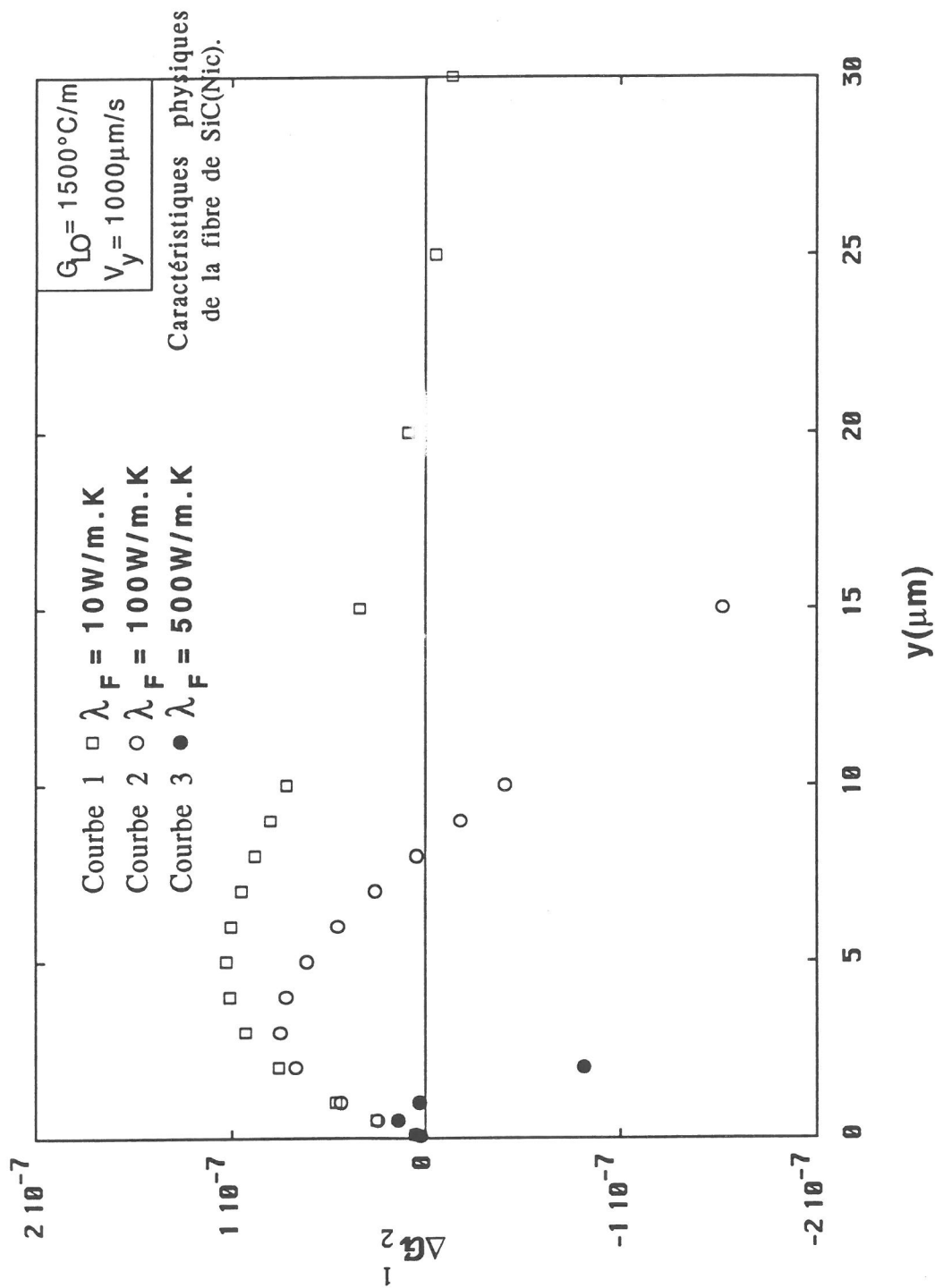


**Figure III.28:** Evolution des courbes  $\Delta G=f(y)$  sous gradient thermique  $G_{LO}$  faible lorsque la fraction volumique de fibres augmente au niveau de l'interface S/L.



**Figure III.29:** Evolution des courbes  $\Delta G=f(y)$  sous gradient thermique  $G_{LO}$  élevé lorsque la fraction volumique de fibres augmente au niveau de l'interface S/L.





**Figure III.30:** Variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation et de la conductivité thermique du renfort.

Premièrement, la méthode d'élaboration des matériaux engendre une incertitude sur la fraction volumique de fibres au départ de l'expérience de solidification dirigée. Il en résulte que divers matériaux supposés de même fraction volumique et solidifiés dans des conditions expérimentales identiques peuvent se comporter légèrement différemment.

Prenons par exemple le cas de plusieurs matériaux à 1% de fibres de carbure de silicium(Nicalon) traités par solidification dirigée dans des conditions identiques à celles utilisées pour l'échantillon n°1. La transition entre le phénomène d'absorption et de rejet oscillera, pour l'ensemble des matériaux de cette même série, autour d'une valeur moyenne. Dans ces conditions, si l'influence du gradient thermique  $G_{L0}$  à l'égard du phénomène d'absorption est très faible, il se peut qu'elle soit équivalente à celle résultant de l'incertitude sur la fraction volumique de départ, auquel cas il devient alors difficile de déterminer expérimentalement l'influence du gradient thermique  $G_{L0}$  à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet.

Deuxièmement, il s'avère difficile de faire varier les gradients thermiques de plusieurs ordres de grandeur, en conséquence de quoi l'influence de ce paramètre est délicate à mettre en évidence.

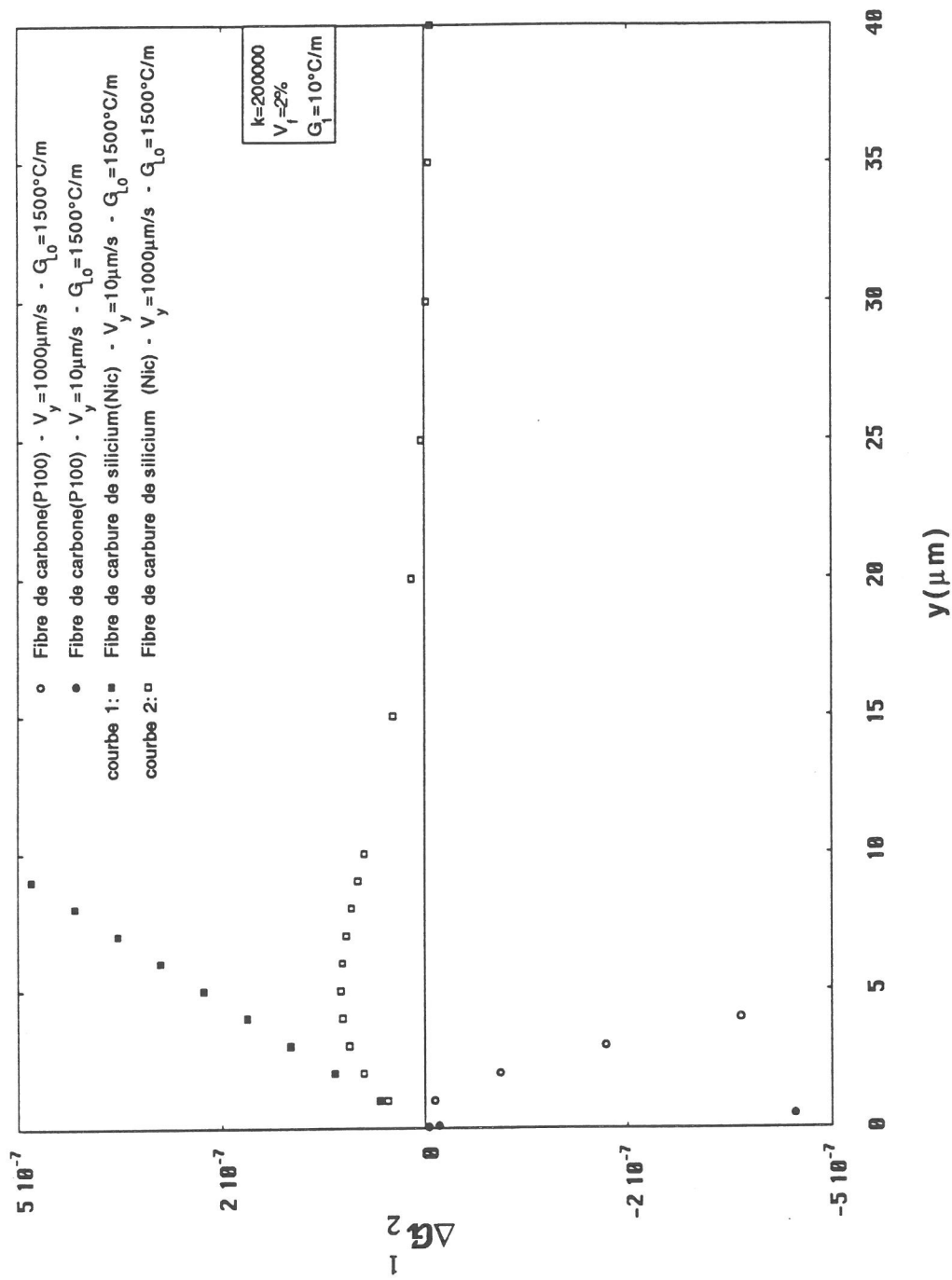
### 3.4.2 - Influence des caractéristiques physiques et géométriques du renfort:

Pour mener à bien cette étude, il est primordial que chacune des comparaisons effectuées entre certains des renforts sélectionnés puissent mettre en évidence à chaque fois, l'influence unique d'une caractéristique physique. Malheureusement, parmi les renforts couramment commercialisés, il est très difficile, voir impossible, de satisfaire totalement à cette exigence. En conséquence, toute comparaison entre les diverses fibres sélectionnées fait apparaître l'influence couplée d'au moins deux caractéristiques physiques.

De façon à pallier cet inconvénient, une étude préliminaire est effectuée pour déterminer l'influence théorique de la caractéristique physique concernée. Ce travail consiste tout d'abord à choisir des valeurs quelconques pour chaque paramètre. On varie alors la grandeur physique dont on veut déterminer l'influence tout en maintenant les autres constantes de façon à tracer la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation et de la caractéristique physique concernée. Cette étude terminée, on peut alors expliquer par l'intermédiaire du modèle, les divergences de comportement entre certaines fibres du fait des écarts existants entre leurs caractéristiques physiques.

#### 3.4.2.1 - Influence de la conductivité thermique $\lambda_F$ du renfort fibreux ou filamentaire:

L'influence de la conductivité thermique du renfort fibreux ou filamentaire à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet peut être étudiée en analysant la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation représentée sur la figure III.30. Les courbes 1, 2 et 3 ont été tracé respectivement pour une conductivité thermique faible



**Figure III.31:** Variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation concernant le comportement des fibres de carbone(P100) et carbure de silicium(Nic) à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet

( $\lambda_F=10\text{W/m.K}$ ), modérée ( $\lambda_F=100\text{W/m.K}$ ) et élevée ( $\lambda_F=500\text{W/m.K}$ ). A titre indicatif, les autres caractéristiques physiques utilisées pour mener cette étude à son terme, sont celles de la fibre de carbure de silicium(Nicalon).

D'après la figure III.30, quelle que soit la valeur de la conductivité thermique du renfort, son comportement est régi par le cas n°2 puisque le paramètre  $C_1$  est négatif pour les conditions expérimentales et caractéristiques physiques utilisées. Comme nous l'avons mentionné au chapitre précédent (paragraphe 2.3.3.2), le phénomène d'absorption ne peut donc se développer que si l'amplitude  $y$  de la perturbation est supérieure à une amplitude critique  $y_{\max}$ .

Après examen de la figure III.30, on constate également que l'amplitude critique  $y_{\max}$  à partir de laquelle le renfort est susceptible d'être absorbé, diminue lorsque la conductivité thermique du renfort augmente. Par conséquent, il est indéniable que le phénomène d'absorption se développera d'autant plus facilement que cette caractéristique thermique est élevée.

Son influence à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet peut être étudiée expérimentalement en comparant le comportement des fibres de carbure de silicium(Nicalon) et carbone(P100).

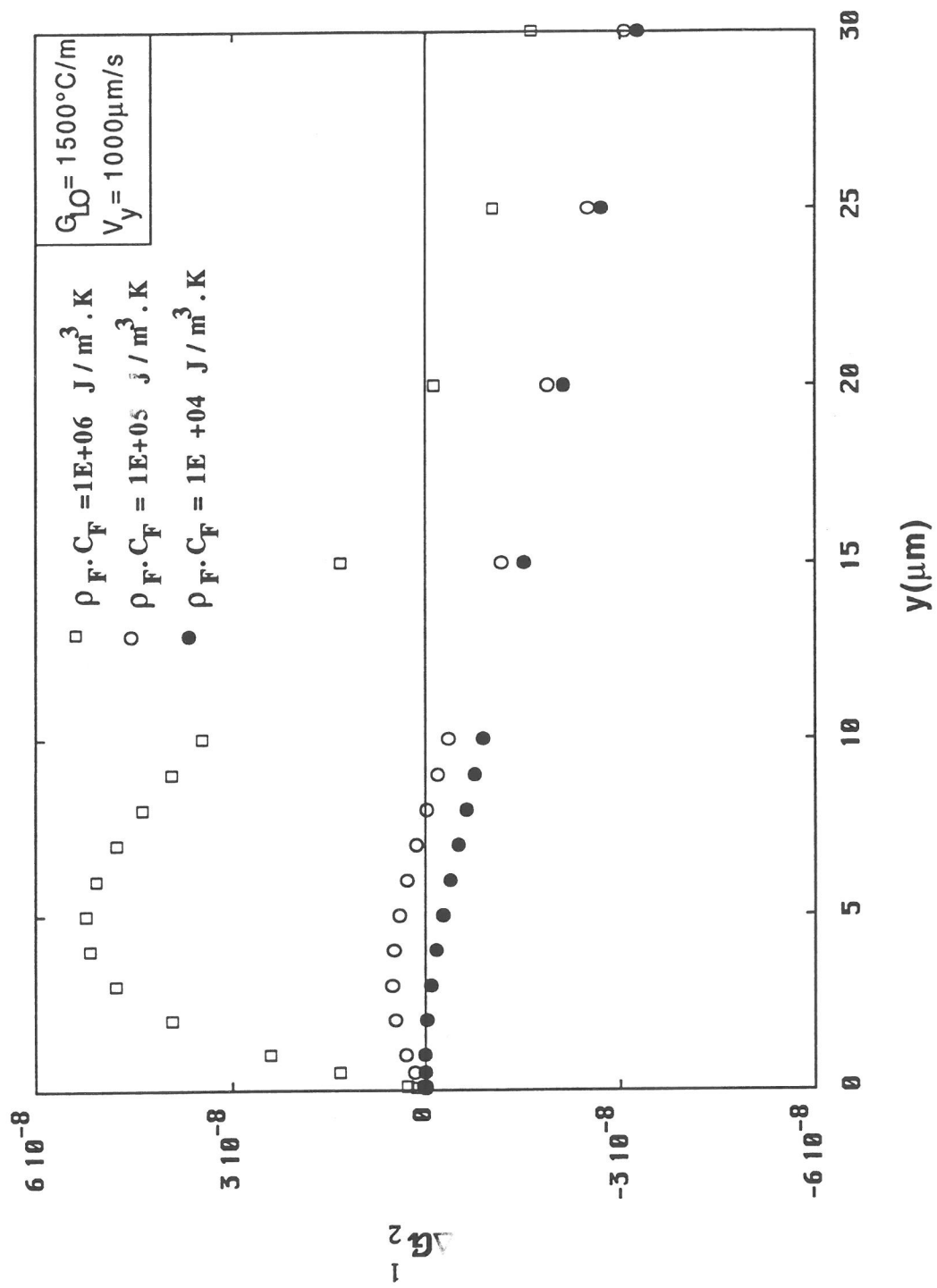
En effet, ces deux renforts se caractérisent par des conductivités thermiques totalement différentes, celle de la fibre de carbone étant cent soixante fois plus importante que celle de la fibre de carbure de silicium. D'autre part, l'examen du tableau III.1 met en évidence un léger écart entre les masses volumiques et capacités calorifiques volumiques de ces deux fibres, si bien que l'influence de ces deux paramètres devra être prise en compte lors de l'analyse du comportement de chaque fibre.

A l'image des résultats expérimentaux relatifs aux échantillons n°31, 32, 34 et 35, la fibre de carbone de conductivité thermique élevée ( $\lambda_F=520\text{W/m.K}$ ) est instantanément absorbée aux faibles fractions volumiques ( $V_F=2\%$ ) quelle que soient les conditions de solidification.

Au contraire, les échantillons n°7 à 12 comportant 2% de fibres de carbure de silicium mettent en évidence, au début de l'expérience, un phénomène de rejet suivi d'une absorption du renfort lorsque la fraction volumique atteint 4% à l'interface S/L.

Ces comportements s'expliquent parfaitement par le modèle représentant la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation pour chacun des deux systèmes A5/fibre de carbone(P100) et A5/fibre de carbure de silicium(Nicalon) (Figure III.31).

Quelles que soient les conditions de solidification, la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation s'apparente au cas n°2 en ce qui concerne le système A5/carbone présentant une faible fraction volumique de fibres ( $V_F=2\%$ ). Dans ces conditions, le modèle prévoit une absorption des fibres dès le début de l'expérience de solidification dirigée si l'amplitude  $y$  de la perturbation est supérieure à l'amplitude critique  $y_{\max}$ . Cette dernière étant extrêmement faible(extremum non visible sur la figure III.31), il n'est pas



**Figure III.32:** Variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation et de la capacité calorifique volumique du renfort.

surprenant qu'un phénomène d'absorption se développe au sein des échantillons n°31, 32, 34 et 35 en début d'expérience.

Dans le cas du système A5/SiC(Nic), il nous faut considérer séparément les courbes 1 et 2.

A faible vitesse de solidification (courbe 1), la variation d'énergie de Gibbs est positive quelle que soit l'amplitude  $y$  de la perturbation (Cas n°4), si bien qu'un phénomène de rejet se développe en début d'expérience. Cette prédiction est en accord avec les résultats obtenus sur les échantillons n°10, 11 et 12 solidifiés à faible vitesse de translation et présentant une fraction volumique de fibres égale à 2%. Au fur et à mesure que le phénomène de rejet se développe, la fraction volumique augmente à l'interface S/L. Il en résulte une diminution du paramètre  $C_1$  conduisant à une évolution de la courbe 1 depuis le cas n°4 vers le cas n°3 (Figure III.31). Dès lors que la fraction volumique atteint 4% à l'interface S/L, le phénomène d'absorption apparaît pour une amplitude  $y$  de perturbation telle que  $y_{\max} < y < y_{\min}$ .

A vitesse de solidification élevée (courbe 2), le comportement de la fibre de carbure de silicium à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet s'explique en considérant le cas n°3. D'après le modèle, un phénomène d'absorption se développe en début d'expérience uniquement si  $y_{\max} < y < y_{\min}$ . Cette condition n'étant manifestement pas satisfaite dans le cas des échantillons n°7, 8 et 9, le rejet des fibres de carbure de silicium se poursuit jusqu'à ce qu'elle soit atteinte.

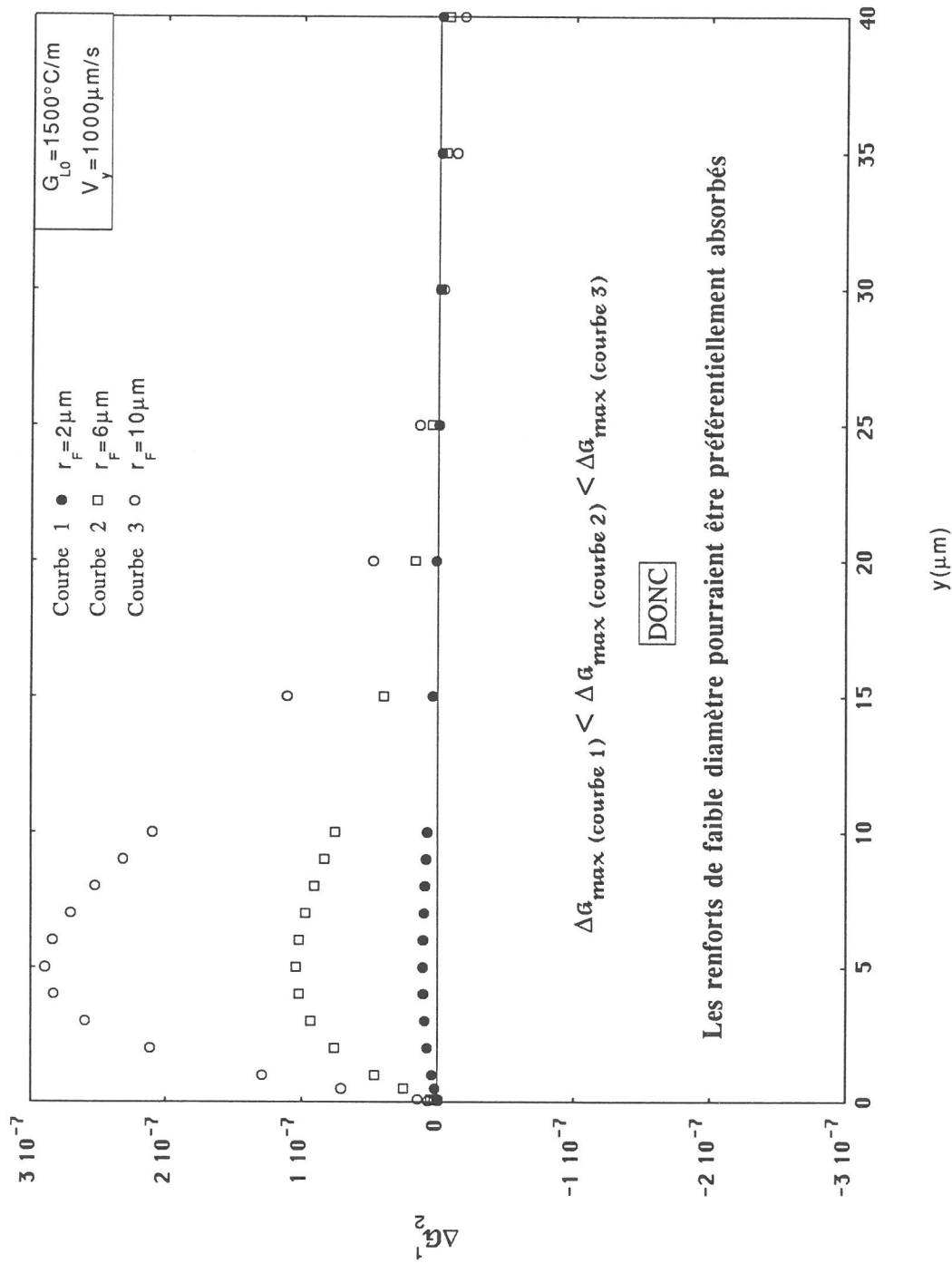
En résumé, dans le cas du système A5/carbone, le modèle prévoit une absorption quasi-instantanée du renfort ( $y_{\max}$  très faible) par le front de solidification, prédiction en accord avec les résultats expérimentaux des échantillons n°31, 32, 34 et 35.

Dans le cas du système A5/SiC(Nic), le modèle prévoit un phénomène de rejet en début d'expérience ( $y_{\max}$  trop grand) suivi d'une absorption des fibres lorsque  $y_{\max} < y < y_{\min}$ . A l'image des résultats obtenus sur les échantillons n°7 à 12, cette condition n'est satisfaite qu'en fin d'expérience lorsque la fraction volumique de fibres est proche de 4%.

Etant donné l'écart important entre les conductivités thermiques de ces deux renforts par rapport à celui concernant les masses volumiques et capacités calorifiques volumiques, on peut penser que la différence de comportement entre ces deux fibres est principalement due à l'influence de la conductivité thermique. Il n'est cependant pas impossible que la faible capacité calorifique volumique de la fibre de carbone ne vienne accentuer l'influence de la conductivité thermique. En effet, ainsi que nous pourrions le voir par la suite, le phénomène d'absorption se développe d'autant plus facilement que ce paramètre est faible.

#### 3.4.2.2 - Influence de la capacité calorifique volumique $\rho_F C_F$ du renfort fibreux ou filamenteux:

L'influence de cette caractéristique thermique à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet a été étudié par l'intermédiaire du modèle de comportement décrivant la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation (Figure III.32). Pour



**Figure III.33:** Variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation et du rayon du renfort fibreux ou filamentaire.

ce faire, nous avons décidé de faire varier la capacité calorifique volumique de la fibre en choisissant une valeur plutôt faible ( $\rho_F.C_F=10^4 \text{ J/m}^3.\text{K}$ ), une valeur intermédiaire ( $\rho_F.C_F=10^5 \text{ J/m}^3.\text{K}$ ) et enfin une valeur plutôt élevée ( $\rho_F.C_F=10^6 \text{ J/m}^3.\text{K}$ ). A titre indicatif, les caractéristiques physiques utilisées pour réaliser cette étude sont celles de la fibre de carbure de silicium(Nicalon).

A l'image des courbes 1,2 et 3, dès lors que la capacité calorifique volumique diminue, l'allure de la variation d'énergie de Gibbs évolue en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation depuis le cas n°3(courbe 1) vers le cas n°2(courbe 2) et enfin le cas n°1(courbe 3). Dans le même temps, on observe une diminution de l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation critique avec la capacité calorifique volumique. Ces observations nous permettent de conclure que le modèle de comportement tend à prévoir une absorption préférentielle du renfort pour de faibles valeurs de cette caractéristique thermique.

En comparant les capacités calorifiques volumiques au comportement respectif de chacun des renforts au sein des matériaux traités (Tableau III.7), une prédominance du phénomène d'absorption apparaît pour les faibles capacités calorifiques volumiques.

La fibre de carbone ainsi que les filaments de bore et carbure de silicium(s), caractérisés par de très faibles valeurs de capacités calorifiques volumiques, sont absorbés dès le début de l'expérience. Le phénomène d'absorption résulte donc à la fois de la faible capacité calorifique volumique et de la forte conductivité thermique de la fibre de carbone. En ce qui concerne les filaments de bore et carbure de silicium( $\sigma$ ), l'importance du diamètre de ces deux renforts conjuguée à leur faible capacité calorifique volumique pourrait favoriser le phénomène d'absorption.

Les fibres de carbure de silicium(Nicalon) et d'alumine(FP), caractérisés par des capacités calorifiques volumiques plus élevées que les renforts cités précédemment, font l'objet d'un phénomène de rejet en début d'expérience. Cette tendance est conforme au modèle prévoyant une prédominance du rejet du renfort aux fortes capacités calorifiques volumiques. Dans le cas de la fibre de carbure de silicium(Nicalon), le phénomène de rejet résulte donc à la fois de la forte capacité calorifique volumique et de la faible conductivité thermique de la fibre de carbure de silicium(Nic).

Il semble donc que le modèle de comportement soit en accord avec les résultats expérimentaux. En effet, le phénomène d'absorption a selon le modèle, d'autant plus tendance à se développer que la capacité calorifique volumique diminue, prédiction en accord avec les résultats expérimentaux.

#### 3.4.2.3 - Influence du rayon $r_F$ du renfort fibreux ou filamenteux:

L'influence du rayon du renfort fibreux à l'égard du phénomène d'absorption ou de rejet a été étudiée au moyen du modèle de comportement en choisissant trois gammes de rayon. Les courbes 1, 2 et 3 représentées sur la figure III.33 ont été respectivement tracées pour des



rayons croissants:  $r_F=2\mu\text{m}$  (courbe 1),  $r_F=6\mu\text{m}$  (courbe 2) et  $r_F=10\mu\text{m}$  (courbe 3). Les caractéristiques physiques utilisées pour tracer la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation, sont celles de la fibre de carbure de silicium(Nicalon).

D'après le modèle, l'influence du rayon est presque inexistante puisqu'on ne décèle aucune variation de l'amplitude  $y_{\text{max}}$  de la perturbation critique associée à une modification de rayon. Dans la mesure où il n'est pas aisé de déterminer analytiquement le sens de variation de  $y_{\text{max}}$ , nous ne chercherons pas à mettre en évidence l'influence que pourrait avoir ce paramètre puisque, de toute façon, elle est faible par rapport à celle des autres paramètres déjà étudiés.

L'influence du rayon du renfort fibreux à l'égard du phénomène d'absorption peut être étudiée expérimentalement en comparant le comportement des renforts fibreux de chacun des trois systèmes présentés dans le tableau III.2. En premier lieu, il convient de constater que chaque système propose une comparaison entre une fibre de faible diamètre telle que la fibre SiC(Nicalon) ( $d_F=12\mu\text{m}$ ) ou  $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{FP})$  ( $d_F=20\mu\text{m}$ ) et un filament de bore ( $d_F=140\mu\text{m}$ ) ou de SiC( $\sigma$ ) ( $d_F=100\mu\text{m}$ ) d'un diamètre beaucoup plus important. Si l'on se réfère aux résultats expérimentaux, la confrontation des trois systèmes nous permet de tirer une première conclusion: A faible fraction volumique ( $V_F=1\%$ ), les filaments de gros diamètre sont absorbés dès le début de l'expérience de solidification dirigée tandis que les fibres d'alumine(FP) ou carbure de silicium(Nicalon) de petit diamètre sont tout d'abord rejetées puis absorbées lorsque la fraction volumique de renforts atteint un seuil critique. Il est donc raisonnable de penser que l'absorption serait d'autant plus favorisée que le diamètre du renfort est élevé. De façon à confirmer ces propos, étudions séparément chacun des trois systèmes.

Le système 1 propose une comparaison entre les comportements du filament de bore et de la fibre de carbure de silicium(Nic) dont le rapport respectif des diamètres est supérieur à 10. De ce fait, il semble légitime de penser que l'absorption préférentielle du filament de bore résulte de l'importance de son diamètre. Cette remarque, proposant une première tendance de l'influence du rayon du renfort, peut cependant être discutée puisque:

- le filament de bore possède une conductivité thermique dix fois supérieure à celle de la fibre de carbure de silicium;
- la capacité calorifique volumique du filament de bore est inférieure à celle de la fibre de carbure de silicium.

L'importance de la conductivité thermique et la faible capacité calorifique volumique du filament de bore par rapport à ceux de la fibre de carbure de silicium favorise le développement du phénomène d'absorption. Par conséquent, ce système ne permet pas de confirmer une absorption préférentielle pour des diamètres de renfort élevés puisqu'elle se développe également pour des conductivités thermiques élevées et des faibles capacités calorifiques volumiques.

Le système 2 propose une comparaison entre les comportements du filament de bore et de la fibre d'alumine dont le rapport respectif des diamètres est de 7.

A nouveau, il est raisonnable de penser, à première vue, que le phénomène d'absorption se développe préférentiellement pour des renforts de diamètres élevés. Or, conformément au paragraphe précédent, la conductivité thermique du filament est légèrement supérieure à celle de la fibre d'alumine. De plus, le filament de gros diamètre possède une capacité calorifique volumique inférieure à celle de la fibre. Les résultats obtenus sur ce système ne permettent donc pas, pour des raisons similaires à celles formulées au paragraphe 3.4.2.2, de se prononcer avec certitude sur l'influence du diamètre du renfort à l'égard de son comportement au voisinage de l'interface S/L.

Le système 3 propose une comparaison entre les comportements du filament de carbure de silicium( $\sigma$ ) et de la fibre d'alumine dont le rapport respectif des diamètres est de 5.

L'examen du tableau III.1 nous permet de remarquer que:

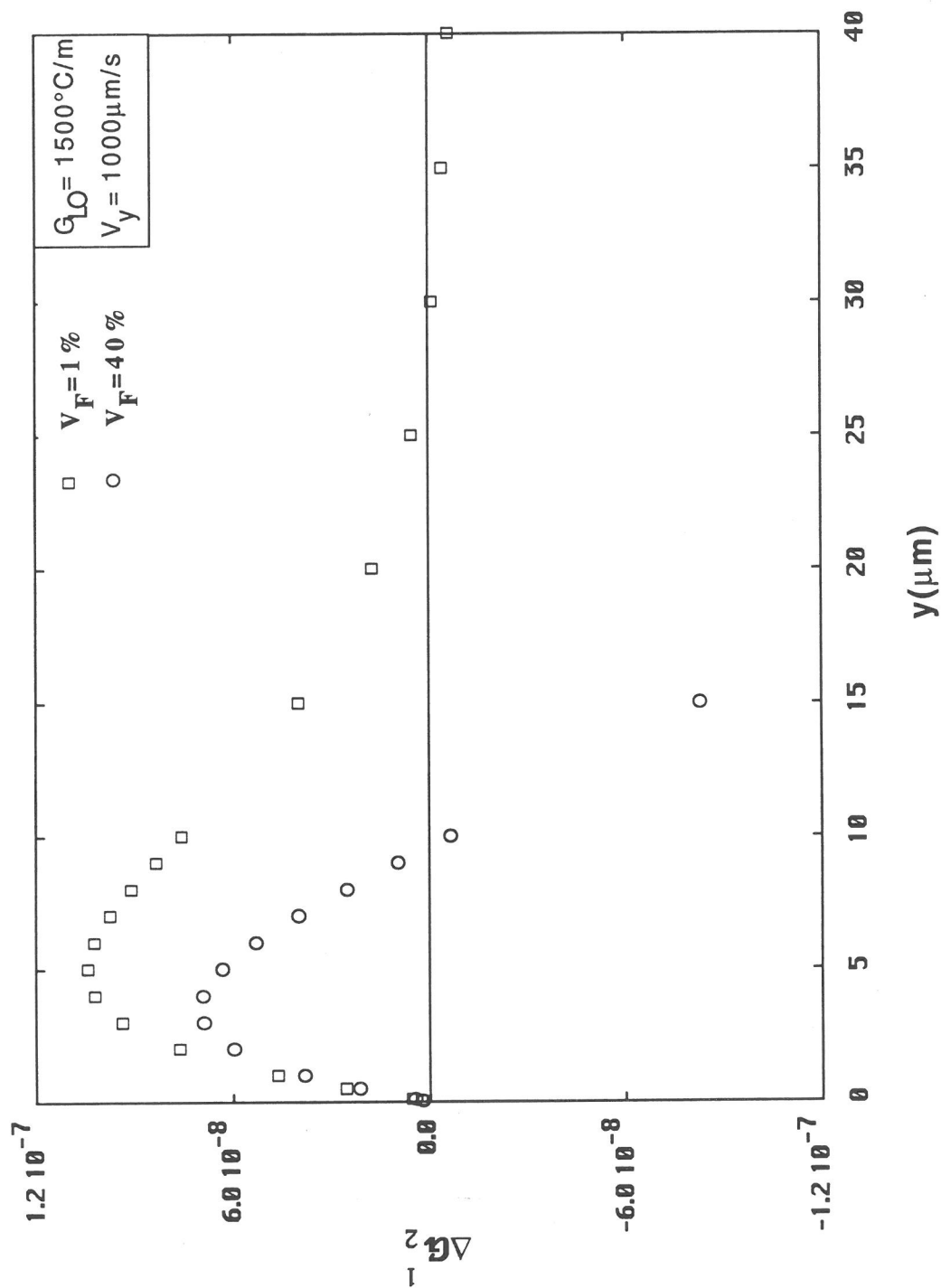
- la conductivité thermique de la fibre d'alumine est supérieure à celle du filament de SiC( $\sigma$ ) ce qui favoriserait l'absorption de la fibre;
- la capacité calorifique volumique du filament est inférieure à celle de la fibre, observation devant conduire à une absorption préférentielle du filament.

Par rapport au deux systèmes précédents, la faible conductivité thermique du filament de carbure de silicium par rapport à celle de la fibre d'alumine ne favorise pas l'absorption du filament. En revanche, l'écart entre leurs conductivités thermiques étant très faible, ce paramètre influence probablement peu les différences de comportement de ces deux renforts.

Par analogie au deux systèmes précédents, le filament possède une faible capacité calorifique volumique par rapport à celle de la fibre, tendance favorisant l'absorption préférentielle du filament.

A nouveau, on ne peut se prononcer avec certitude sur l'influence du diamètre à l'égard de l'absorption ou du rejet du renfort. En revanche, l'observation selon laquelle le phénomène d'absorption se développerait préférentiellement pour des diamètres élevés est, comparativement aux deux systèmes précédents, plus justifiée dans la mesure où la faible conductivité thermique du filament de carbure de silicium par rapport à celle de la fibre d'alumine aurait dû favoriser le rejet du filament.

A la lumière des résultats expérimentaux, il n'est donc pas possible de dégager avec certitude l'influence du diamètre du renfort sur le phénomène d'absorption ou de rejet. On peut cependant penser, après avoir étudié le troisième système, qu'il est plus probable de voir se développer un phénomène d'absorption pour des diamètres de renfort élevés.



**Figure III.34:** Variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation et de la fraction volumique de renfort à l'interface S/L.

#### 3.4.2.4 - Influence de la masse volumique $\rho_F$ du renfort fibreux ou filamentaire:

L'influence de la masse volumique  $\rho_F$  du renfort est analogue, du point de vue du modèle, à celle de la capacité calorifique volumique. Par conséquent, le phénomène d'absorption est d'autant plus susceptible de se développer que la masse volumique  $\rho_F$  du renfort est faible.

De façon à vérifier cette tendance, il convient de se reporter au tableau III.3 proposant une comparaison entre divers couples de renforts.

La forte réactivité du fil métallique d'invar n'ayant pas permis l'élaboration d'un matériau composite à matrice d'aluminium, l'influence de la masse volumique du renfort ne peut être étudiée qu'au moyen du troisième système proposant une comparaison entre les comportements des filaments de bore et carbure de silicium.

Du point de vue expérimental, le comportement de ces deux filaments est équivalent si bien qu'il s'avère difficile de déterminer l'influence de la masse volumique du renfort en raison de son couplage avec celle de la conductivité thermique ou de la capacité calorifique massique. De ce fait, toute estimation de l'influence de ce paramètre ne pouvant être qu'illusoire, nous ne nous attarderons pas plus en détail sur cette facette de notre étude.

#### 3.4.3 - Influence de la fraction volumique $V_F$ de renfort fibreux ou filamentaire:

L'influence théorique de la fraction volumique de fibres à l'interface S/L a été étudiée par l'intermédiaire du modèle de comportement. De façon à faire clairement ressortir l'influence de ce paramètre, nous avons tracé la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation (Figure III.34) pour des fractions volumiques faibles ( $V_F=1\%$ ) (courbe 1) et élevée ( $V_F=40\%$ ) (courbe 2). Les caractéristiques physiques utilisées pour mener cette étude à son terme sont celles de la fibre de carbure de silicium.

Au premier abord, l'allure de la variation d'énergie de Gibbs en fonction de l'amplitude  $y$  de la perturbation évolue d'autant plus vers le cas n°1 caractéristique du phénomène d'absorption que la fraction volumique augmente à l'interface S/L. Dans le même temps, ce comportement s'accompagne d'une diminution de l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation critique au delà de laquelle le phénomène d'absorption est susceptible de se développer.

De façon à interpréter les résultats expérimentaux, considérons le comportement du renfort de carbure de silicium au sein de l'échantillon n°1. Au début de l'expérience de solidification dirigée, l'amplitude  $y$  de la perturbation est inférieure à l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation critique si bien qu'un phénomène de rejet se développe. Au fur et à mesure que ce comportement se poursuit, la fraction volumique augmente au niveau du front de solidification. Il en résulte une diminution du paramètre  $C_1$  conduisant à une diminution de l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation critique. Dès lors que  $y > y_{\max}$ , le phénomène d'absorption apparaît et se poursuit

jusqu'à la fin de l'échantillon. Il existe donc une fraction volumique critique au delà de laquelle le phénomène d'absorption se développe. Elle est atteinte dès lors que  $y > y_{\max}$  ce qui correspond à une fraction volumique critique de 4% pour la fibre de carbure de silicium solidifiée dans des conditions telles que celles utilisées pour l'échantillon n°1.

Cette conclusion est confirmée par le comportement du renfort de carbure de silicium au sein des échantillons n°13 à 18 caractérisé par un phénomène d'absorption aux fractions volumiques de 5%.

En ce qui concerne la fibre d'alumine, les résultats expérimentaux montrent qu'elle se comporte de façon analogue à la fibre de carbure de silicium, ce qui n'est pas étonnant compte tenu des caractéristiques physiques et géométriques proches pour ces deux renforts.

Il est également intéressant de constater en consultant les résultats obtenus sur le système A5/carbone, que le phénomène d'absorption se développe dès les faibles fractions volumiques de 2% quelles que soient les conditions de solidification. La fraction volumique critique est donc pour ce type de renfort inférieure à 4%. De plus, il est légitime de penser qu'elle dépend des caractéristiques physiques et géométriques du renfort et évoluerait notamment inversement à la conductivité thermique, très élevée pour la fibre de carbone. Elle pourrait également évoluer inversement au diamètre du renfort dans la mesure où l'absorption des filaments de bore et carbure de silicium se développe dès le début de l'expérience pour de faibles fractions volumiques d'environ 1%.

Une bonne corrélation semble donc s'établir entre les résultats expérimentaux et les prédictions du modèle de comportement, tout au moins du point de vue qualitatif. En effet, la fraction volumique, prise en compte dans le modèle sous forme de l'effort de compression, s'avère d'une influence trop modeste pour fournir une interprétation quantitative exacte du phénomène. Il serait donc intéressant, dans le cadre d'une étude ultérieure, d'approfondir cet aspect en essayant de proposer une meilleure prise en compte de ce paramètre.

## CONCLUSION

L'étude expérimentale du comportement d'un renfort fibreux ou filamentaire au voisinage d'une interface S/L de géométrie plane s'est avérée très délicate pour diverses raisons explicitées dans ce qui suit.

Dans un premier temps, il a fallu sélectionner une matrice métallique susceptible de se solidifier dans des conditions de grande stabilité. En théorie, la solidification colonnaire de métaux purs permet de satisfaire à cette exigence. En revanche, les métaux commercialement disponibles ne sont jamais totalement exempts d'impuretés si bien que l'interface peut, dans certaines conditions, être le siège de perturbations. Cette observation prise en compte, notre choix s'est porté sur une matrice d'aluminium de type A5 présentant un bon compromis entre son coût et sa pureté voisine de 99.5%.

Une seconde difficulté est apparue dans la sélection des renforts fibreux ou filamenteux. Nous devions principalement satisfaire deux exigences, à savoir:

- les renforts sélectionnés devaient être chimiquement compatibles avec la matrice métallique choisie, c'est à dire être apte à la réalisation d'un matériau composite à matrice d'aluminium par des techniques proches de la fonderie;
- les renforts devaient être choisis de telle sorte que, par comparaisons mutuelles de leurs caractéristiques physiques ou géométriques, il soit possible de mettre en évidence à chaque confrontation, l'influence d'une seule de ces caractéristiques. Cette condition n'a malheureusement pu être parfaitement satisfaite en raison (i) du nombre restreint de fibres ou filaments potentiellement utilisables, (ii) des valeurs différentes des caractéristiques physiques de l'ensemble des renforts dont nous pouvions disposer.

Après avoir sélectionné la matrice métallique et les renforts fibreux ou filamenteux, il nous fallait choisir une méthode d'élaboration du matériau.

Le rhéomoulage, particulièrement bien adapté à la mise en oeuvre de matériaux composites à renforts courts, fut donc retenu dans la mesure où il s'avérait possible d'incorporer les fibres ou filaments au sein de la matrice à l'état liquide. L'emploi de cette technique nous a permis d'élaborer des matériaux composites renforcés par (i) des fibres de carbure de silicium (Nicalon) ou d'alumine (FP), (ii) des filaments de carbure de silicium ( $\sigma$ ) ou de bore (W). Dans le cas où le rhéomoulage ne pouvait être utilisé, les matériaux composites concernés et notamment ceux à fibres de carbone (P100), furent élaborés par squeeze-casting.

La caractérisation des demi-produits composites élaborés fut également une source de difficultés puisqu'il fallait trouver une méthode permettant de vérifier l'homogénéité du renfort au sein du matériau.

La radiographie s'avérant inefficace lorsqu'il s'agit de détecter des fibres de dimension micronique, un polissage des barreaux issus du demi-produit de départ a permis par observation microscopique, de vérifier l'homogénéité de la fraction volumique du renfort.

Une fois ces étapes successives franchies, il a été possible d'envisager l'étude de l'interaction du renfort avec une interface S/L plane. Pour cela, une technique de solidification dirigée a été sélectionnée de manière à obtenir un compromis optimal entre la stabilité thermique et les contrôles (i) de la forme du front de solidification, (ii) de la vitesse  $V_y$  de l'interface S/L et (iii) du gradient thermique  $G_{LO}$  au niveau du front de solidification. La méthode de Bridgman ainsi choisie a conduit à concevoir et mettre au point un four du même nom comportant (i) une zone chaude où la température est supérieure à la température  $T_L$  du liquidus de la matrice, (ii) une zone froide où la température est inférieure à  $T_L$  et (iii) une zone adiabatique encadrant ces deux zones.

De façon à mettre en évidence l'influence des conditions de solidification sur le comportement du renfort à l'interface S/L, deux vitesses  $V_T$  de translation du creuset ont été expérimentées (  $V_T=1000\mu\text{m/s}$  et  $V_T=10\mu\text{m/s}$ ) avec trois valeurs de gradients thermiques  $G_{LO}$  à l'interface S/L (  $G_{LO}=1500^\circ\text{C/m}$ ,  $G_{LO}=3000^\circ\text{C/m}$  et  $G_{LO}=5000^\circ\text{C/m}$ ).

Des opérations de solidification dirigée ont été réalisées sur les systèmes A5/SiC(Nic), A5/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP), A5/carbone(P100), A5/SiC( $\sigma$ ) et A5/bore(W) caractérisés par des faibles fractions volumiques de renforts ( $V_F=1\%$  à  $5\%$ ). Les résultats obtenus sur ces cinq systèmes permettent de distinguer deux types de comportement du renfort au niveau du front de solidification.

Le premier concerne le comportement des fibres de carbure de silicium(Nic) et alumine(FP). Il se caractérise par (i) un phénomène de rejet aux faibles fractions volumiques de renforts ( $V_F=1\%$  ou  $2\%$ ), (ii) un phénomène d'absorption lorsque la fraction volumique atteint un seuil critique proche de  $4\%$  suivant les conditions de solidification.

Le second concerne le comportement des renforts de carbone(P100), carbure de silicium( $\sigma$ ) et bore(W). Quelles que soient les conditions de solidification, on constate pour ces trois renforts, un phénomène d'absorption aux faibles ( $V_F=1\%$  ou  $2\%$ ) et fortes ( $V_F=5\%$ ) fractions volumiques dès le début de l'expérience de solidification dirigée. Dans ces conditions, la fraction volumique critique au delà de laquelle se développe un phénomène d'absorption, serait inférieure à (i)  $V_F=1\%$  pour les filaments de carbure de silicium( $\sigma$ ) et bore(W), (ii)  $V_F=2\%$  pour la fibre de carbone.

A la lumière des résultats expérimentaux, il semble que l'augmentation de la fraction volumique à l'interface S/L favorise l'absorption du renfort. Si d'un point de vue qualitatif, le modèle confirme cette tendance, d'un point de vue quantitatif il ne prend pas suffisamment en compte ce paramètre pour pouvoir expliquer les comportements observés.

D'après les interprétations des résultats, la fraction volumique critique d'absorption semble dépendre de la nature du renfort et évoluerait notamment (i) de le même sens que la capacité calorifique volumique  $\rho_F C_F$  du renfort, (ii) inversement à la conductivité thermique



$\lambda_F$  et au rayon  $r_F$  des fibres ou filaments. Cette corrélation entre les caractéristiques physiques ou géométriques du renfort et la fraction volumique critique est justifiée dans la mesure où l'analyse des résultats et les prédictions du modèle ont montré que le phénomène d'absorption avait d'autant plus tendance à se développer que (i)  $\lambda_F$  et  $r_F$  sont élevés, (ii)  $\rho_F C_F$  est faible.

L'influence de la vitesse de solidification et du gradient thermique à l'interface S/L a été étudiée, notamment en comparant le comportement des fibres de carbure de silicium(Nic) ou alumine(FP) au sein des échantillons soumis à des conditions de solidification variables. Il ressort de cette étude que le phénomène d'absorption se développe d'autant plus facilement que (i) la vitesse  $V_y$  de solidification est élevée, (ii) le gradient thermique  $G_{LO}$  à l'interface S/L est faible. Leur influence semble cependant beaucoup plus limitée que celle de paramètres telles que la fraction volumique ou la conductivité thermique du renfort puisque, si les résultats expérimentaux privilégient de façon modérée le phénomène d'absorption pour des vitesses de translation élevées, ils ne permettent pas de mettre en évidence l'influence du gradient thermique.

Même si le modèle nécessite encore certaines améliorations, la confrontation des résultats expérimentaux aux prédictions théoriques est assez satisfaisante, tout au moins au niveau des tendances. Si l'on se rappelle que le rôle du modèle exposé en conclusion de la deuxième partie n'était pas de prédire le comportement exact du renfort, mais de dégager les tendances permettant de comprendre l'influence de leurs caractéristiques physiques et des conditions de solidification, l'objectif que nous nous étions fixé est atteint.



## REFERENCES

- 1- W. KURZ, D.J. FISHER, "Fundamentals of solidification", Trans tech publications, Switzerland, 1986.
- 2- Documentation technique concernant la norme des alliages d'aluminium.
- 3- Documentation technique concernant la fibre  $\sigma$ .
- 4- P. MARTINEAU, "Les composites à renfort filamentaire de carbure de silicium et à matrice à base de titane", Thèse de l'Université de Bordeaux I, France, 1983.
- 5- R. PAILLER, "Les matériaux composites fibres de bore-titane. Essai de corrélation entre interactions chimiques fibres-matrice et caractéristiques mécaniques", Thèse de l'Université de Bordeaux I, France, 1979.
- 6- F. GIROT, "Elaboration et caractérisation de matériaux composites à matrice d'alliage léger renforcée par des fibres courtes ou des whiskers", Thèse de l'Université de Bordeaux I, France, 1987.
- 7- C. MILLIERE, Thèse
- 8- J.G. LEGOUT, G. LESPERENCE, "Characterization of the interface reactions in AL/SiC composites", International symposium on advances in processing of ceramic and metal matrix composites, Halifax, 1989.
- 9- T. STEPHENSON, "The interfacial role of silica on ceramic fibre-reinforced aluminium alloy composites", ECCM 4, Stuttgart, 1990.
- 10- J.C. VIALA, "Interaction chimique matrice/renfort dans les composites AL/SiC", ECCM 1, Bordeaux, 1985.
- 11- S. KOHARA, N. MUTO, "Degradation of carbon fibers in molten aluminium", ECCM 1, Bordeaux, 1985.
- 12- M.K. SHORSHOROV, B.A. AREFJEV, A.V. REBROV, "Formation of borides and other phases during welding of boron with aluminium", ICCM 5, San diego, 1985.
- 13- K.N. STREET, N. TAN TAI, D. HEARN, "Thermomechanical behaviour of boron fibers in aluminium and titanium matrix composites", Fifth international symposium on boron and borides, Bordeaux, 1975.
- 14- J. THEBAULT, "Vapodéposition chimique du bore. Application à l'étude des interactions fibre-matrice dans les matériaux composites à base de titane et de fibres de bore", Thèse de l'Université de Bordeaux I, France, 1977.
- 15- W. KIM, A. KOCZAK, A. LOWLEY, "Interface reaction and characterization in B/AL composites", ICCM 2, Canada, 1978.
- 16- D.O. KARLSEN, J.B. BORRADAILE, J. GJONNES, J. TAFTO, " Transmission electron microscope study of the interface region in AL matrix composites", 9<sup>th</sup> Riso international symposium on metallurgy and materials science, Danmark, 1988.
- 17- K. PETTERSEN, "Solidification of magnesium alloy AZ91", Thèse de l'Université de Trondheim I, Norvège, 1988.
- 18- J.M. QUENISSET, "", Thèse de l'Université de Bordeaux I, France, 1987.

- 19- D.M.L. BARTHOLOMEW, A. HELLAWELL, "", J of crystal growth, 50, 1980, p 453-460.
- 20- T.A. WEI FU, W.R. WILCOX, "", J of crystal growth, 48, 1980, p 416-424.
- 21- S. SANGHAMITRA, W.R. WILCOX, "", J of crystal growth, 28, 1975, p 36-40.
- 22- T.I. EJIM, W.A. JESSER, "", J of crystal growth, 69, 1984, p 509-514.
- 23- T.A. WEI FU, W.R. WILCOX, "", J of crystal growth, 51, 1981, p 557-567.
- 24- P.C. SUKANEK, "", J of crystal growth, 58, 1982, p 208-218.

## **CONCLUSION GENERALE**

## CONCLUSION GENERALE

L'étude présentée dans ce mémoire est le premier travail entrepris au laboratoire sur le comportement d'un renfort au voisinage d'un front de solidification. Elle est née d'une observation effectuée sur la microstructure d'un matériau composite à matrice d'aluminium renforcé par des fibres courtes, mettant en évidence une localisation quasi-systématique du renfort dans le constituant eutectique de l'alliage considéré. La fragilité de ce constituant liée à son manque de ductilité n'étant pas compatible avec l'obtention de bonnes caractéristiques mécaniques, il nous a alors semblé intéressant d'étudier dans quelles mesures le renfort pouvait être localisé au moins en partie, dans la phase primaire de l'aluminium présentant une meilleure ductilité. A la suite de cette observation, l'objectif de notre étude a été de comprendre les mécanismes qui régissent le comportement d'un renfort au voisinage d'un front de solidification destabilisé, c'est à dire étudier le phénomène d'absorption ou de rejet des fibres par les globules d'aluminium croissants dans le liquide lors de la solidification d'un alliage.

Une synthèse bibliographique faisant l'objet du chapitre I a permis de regrouper, dans un premier temps, les travaux effectués sur l'interaction de particules avec une interface S/L plane résultant de la solidification de matrices organiques. Il ressort principalement de l'analyse des diverses études répertoriées, que le comportement des particules au voisinage d'un front de solidification plan dépend d'un grand nombre de paramètres telles que les conditions de solidification ou les caractéristiques physiques et géométriques du renfort. Le modèle d'Uhlmann est l'approche théorique la plus développée parmi celles qui ont été publiées. Dans la mesure où elle propose des prédictions de vitesse critique d'absorption en désaccord avec les résultats expérimentaux, nous ne pouvions pas nous baser sur ce modèle, d'autant qu'il prend en compte la solidification de matrices organiques présentant des aspects différents de celle des métaux.

Dans un second temps, nous nous sommes intéressés aux travaux développés par Stéfanescu sur l'interaction de particules avec une interface S/L destabilisée résultant de la solidification d'un alliage d'aluminium. Les résultats obtenus sur divers systèmes fibre/matrice traités dans un four de Bridgman s'avèrent très délicats à interpréter dans la mesure où la destabilisation de l'interface S/L conditionne le comportement du renfort au même titre que les paramètres cités précédemment. L'influence de ces derniers restant à préciser dans le cas de systèmes renfort/matrice métallique, l'utilisation d'un alliage d'aluminium susceptible de se solidifier en front destabilisé complique un peu plus l'étude déjà complexe en raison du nombre important de paramètres intervenant dans le phénomène d'absorption ou de rejet.

A la suite des enseignements retirés de ces travaux, il nous est apparu préférable dans le cadre d'une première étude du phénomène d'absorption ou de rejet, de s'affranchir du problème lié à la géométrie complexe de l'interface S/L pour faciliter la mise en évidence et comprendre l'influence des paramètres contrôlant le comportement du renfort au voisinage d'un front de solidification plan. Dans ces conditions, l'objectif que nous nous étions fixé initialement a été révisé et a finalement consisté à étudier les phénomènes qui conditionnent le mécanisme

d'absorption ou de rejet d'un renfort au voisinage d'une interface S/L plane résultant de la solidification d'un métal pur.

Un travail de modélisation présenté dans le chapitre II a permis à partir d'hypothèses de départ simples, d'étudier l'évolution du comportement d'un renfort, soit vers un phénomène de rejet (cas 1), soit vers un phénomène d'absorption (cas 2). Le modèle développé, représentant la variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G$  depuis l'état 1 vers l'état 2 en fonction (i) des caractéristiques physiques du renfort et de la matrice, (ii) des conditions de solidification, (iii) de l'amplitude  $y$  de la perturbation de l'interface S/L, tend à prédire un phénomène d'absorption lorsque:

- le gradient thermique  $G_{L0}$  dans le liquide au voisinage du front de solidification est faible;
- la vitesse  $V_y$  de solidification est élevée;
- la conductivité thermique  $\lambda_F$  de la fibre est élevée;
- la capacité calorifique volumique  $\rho_F.C_F$  du renfort est faible;
- la fraction volumique  $V_F$  de fibres à l'interface S/L est grande.

L'étude expérimentale du comportement d'un renfort fibreux au voisinage d'un front de solidification plan a fait l'objet du chapitre III. Il aborde dans un premier temps le choix d'une matrice. Notre sélection s'est portée sur un alliage d'aluminium de type A5 caractérisé par une pureté proche de 99.5% lui conférant la possibilité de se solidifier avec une interface S/L quasi-plane.

De manière à faire ressortir l'influence des caractéristiques physiques ou géométriques du renfort, il s'est avéré primordial dans un second temps, de sélectionner différentes variétés de fibres se prêtant à une opération d'élaboration par des techniques proches de la fonderie. Le rhéomoulage a ainsi permis d'élaborer les matériaux composites à (i) fibres de carbure de silicium(Nic) et alumine(FP), (ii) filaments de carbure de silicium( $\sigma$ ) et bore, tandis que (iii) le squeeze-casting était utilisé pour mettre en oeuvre les matériaux à fibre de carbone(P100).

Des expériences de solidification dirigée ont été réalisées au sein d'un four de Bridgman sur l'ensemble des systèmes fibre/matrice caractérisés par des faibles fractions volumiques de fibres ( $V_F=1\%$  à  $5\%$ ). Les conditions de solidification ont été variées en utilisant deux vitesses  $V_T$  de translation ( $V_T=10\mu\text{m/s}$  et  $V_T=1000\mu\text{m/s}$ ) et trois gradients thermiques  $G_{L0}$  à l'interface S/L ( $G_{L0}=1500^\circ\text{C/m}$ ,  $G_{L0}=3000^\circ\text{C/m}$  et  $G_{L0}=5000^\circ\text{C/m}$ ).

Les résultats des expériences de solidification dirigée obtenus sur les cinq systèmes renfort/matrice mettent en évidence deux types de comportement du renfort au voisinage du front de solidification:

- En ce qui concerne les matériaux composites A5/SiC(Nic) et A5/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ (FP), un phénomène de rejet se développe pour de faibles fractions volumiques de renforts ( $V_F=1\%$  ou  $2\%$ ) jusqu'à ce qu'une fraction volumique critique proche de  $4\%$  soit atteinte. Au-delà de cette fraction, les fibres de carbure de silicium et d'alumine sont absorbées;

- Quelles que soient les conditions de solidification, les renforts de SiC( $\sigma$ ), bore(W) et carbone(P100) sont absorbés dès les faibles fractions volumiques de 1%.

La confrontation des résultats expérimentaux aux prédictions du modèle exposé dans ce qui suit, permet de dégager les tendances concernant l'influence des conditions de solidification et des caractéristiques physiques ou géométriques du renfort.

En ce qui concerne l'influence de la **conductivité thermique du renfort**, un bon accord s'établit entre les prédictions du modèle et les observations expérimentales. En effet, le phénomène d'absorption se développe d'autant plus facilement que cette caractéristique physique est élevée. Cette observation est particulièrement mise en valeur expérimentalement par comparaison entre le comportement des fibres de carbure de silicium(Nic) et de carbone(P100). Caractérisée par une conductivité thermique cent soixante fois supérieures à celle du renfort de carbure de silicium(Nic), la fibre de carbone est, contrairement à cette dernière, instantanément absorbée pour de faibles fractions volumiques de 2%. Etant donné l'écart important entre les conductivités thermiques de ces deux renforts par rapport à ceux concernant leurs masses volumiques et capacités calorifiques volumiques, nous pouvons penser que cette différence de comportement est principalement due à l'influence de la conductivité thermique.

Cette supposition est confirmée par le modèle prévoyant une absorption quasi-instantanée de la fibre de carbone, en raison d'une très faible valeur de l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation en dessous de laquelle se développe un phénomène de rejet. Les prédictions du modèle concernant le comportement du renfort de carbure de silicium(Nic) mettent en évidence, par rapport au cas précédent, une valeur plus élevée de l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation. Cette évolution croissante du paramètre  $y_{\max}$  favorisant le phénomène de rejet, il n'est pas surprenant que le renfort de carbure de silicium(Nic) soit repoussé par l'interface S/L en début d'expérience lorsque  $y < y_{\max}$ . Dans la mesure où nous n'avons pas réussi à estimer l'amplitude de la perturbation susceptible de se développer au niveau du front, et d'évoluer durant l'expérience de solidification dirigée, nous avons supposé qu'elle atteignait  $y_{\max}$  lorsque la fraction volumique de fibres avoisinait 4% à l'interface S/L. Cette remarque faisant apparaître une limitation du modèle, il pourrait s'avérer intéressant d'approfondir cet aspect de façon à vérifier cette supposition.

D'un point de vue expérimental, le renfort a d'autant plus tendance à être absorbé que sa **capacité calorifique volumique** est faible, comportement en accord avec les prédictions du modèle. Dans la mesure où il n'a pas été possible de trouver deux renforts de capacités calorifiques volumiques différentes ayant par ailleurs leurs autres caractéristiques physiques ou géométriques identiques, l'influence de cette grandeur physique a été étudiée en comparant le comportement de chacun des cinq renforts. Même si l'on ne peut accorder qu'un crédit limité à cette démarche, il est intéressant de constater que les renforts présentant les capacités calorifiques volumiques les plus faibles (fibre de carbone, filament de SiC( $\sigma$ ) et de bore), sont absorbés dès les fractions volumiques les plus faibles ( $V_F=1\%$  ou  $2\%$ ). A l'opposé, les renforts fibreux de carbure de silicium(Nic) et d'alumine caractérisés par des capacités calorifiques volumiques élevées, sont

rejetés pour des fractions volumiques faibles ( $V_F=1\%$  ou  $2\%$ ), jusqu'à ce que soit atteinte une valeur critique proche de  $4\%$ .

Le modèle de comportement est en accord avec les déductions expérimentales puisque l'amplitude  $y_{\max}$  de la perturbation de l'interface S/L au-delà de laquelle le phénomène d'absorption est susceptible de se développer, est d'autant plus grande que la capacité calorifique volumique du renfort est élevée.

Les résultats expérimentaux tendent à montrer une prédominance du phénomène d'absorption pour des renforts de **diamètre** élevé. Dans la mesure où les comparaisons effectuées entre les fibres de petit diamètre et les filaments de rayon important ont mis en évidence un couplage d'au moins deux caractéristiques physiques ou géométriques, la déduction expérimentale proposée précédemment demande à être confirmée.

D'un point de vue théorique, le modèle ne permet pas de mettre en évidence l'influence du diamètre du renfort fibreux. Cette observation trahissant une lacune du modèle, il conviendrait dans une étude ultérieure, d'approfondir cet aspect.

L'influence des **conditions de solidification** sur le comportement du renfort fibreux s'avère très difficile à étudier expérimentalement. En effet, étant données les caractéristiques thermiques de l'aluminium, particulièrement sa forte conductivité thermique, nous n'avons pas réussi à varier les conditions de solidification de plusieurs ordres de grandeurs. D'autre part, la **vitesse  $V_y$  de solidification** et le **gradient thermique  $G_{L0}$  à l'interface S/L** évoluaient au cours de l'expérience du fait des variations des conditions de flux thermiques en zone chaude et froide. Néanmoins, à l'image des résultats expérimentaux, il semble que le phénomène d'absorption se développe d'autant plus facilement que la vitesse de translation du creuset augmente. En revanche l'influence du gradient thermique sur le comportement du renfort n'a pu être mise en évidence expérimentalement.

En ce qui concerne les prédictions du modèle, le phénomène d'absorption a plutôt tendance à se développer pour des valeurs élevées de la vitesse de solidification et faibles du gradient thermique à l'interface S/L.

Suite à cette étude théorique, il est bon de rappeler que ces prédictions présentent un intérêt uniquement dans la mesure où elles mettent en évidence les tendances concernant l'évolution du phénomène d'absorption avec les conditions de solidification. Cette observation est tout à fait compréhensible du fait des difficultés associées à la modélisation des phénomènes de solidification.

Le modèle tel qu'il est présenté, considère que les conditions de solidification ne sont pas modifiées durant l'expérience, or, nous l'avons remarqué précédemment, les conditions de flux thermiques en zone chaude et froide évoluent du début à la fin du traitement.

De plus, nous avons supposé que le phénomène de convection actif en dehors de la couche limite de transfert thermique, n'avait aucune influence sur le comportement du renfort au niveau de l'interface S/L. Or, il n'est pas impossible que, du fait des contraintes technologiques inhérentes à la technique de solidification Bridgman, des perturbations thermiques locales



d'origine convective ne viennent perturber le profil de température au niveau de l'interface S/L, modifiant les équilibres thermiques proposés lors du développement du modèle.

D'autre part, ces équilibres modélisant les transferts thermiques au sein de la cellule élémentaire, ne prennent pas en compte le flux de chaleur dans le liquide ce qui simplifie considérablement l'approche thermique probablement régie à l'interface S/L par une loi d'équilibre à trois constituants: la fibre, le solide et le liquide.

Enfin, nous avons supposé qu'une couche de matrice liquide demeure entre le front de solidification et le renfort aussi bien lors du phénomène d'absorption que de rejet. Cette pellicule est supposée ne pas perturber les transferts thermiques au niveau de l'interface, ce qui constitue une hypothèse dont la validité peut être discutée.

Les résultats expérimentaux obtenus sur les renforts fibreux de carbure de silicium(Nic) et d'alumine mettent en évidence un phénomène d'absorption dès lors que la **fraction volumique** atteint une valeur critique avoisinant 4%. L'augmentation de cette grandeur physique favorise donc l'absorption du renfort par le front de solidification.

D'un point de vue théorique, le modèle prédit une tendance similaire mais s'avère quantitativement inapte à prévoir l'absorption du renfort pour une fraction volumique aussi faible que 4%. Ce paramètre, pris en compte dans le modèle sous forme de l'effort de compression, dispose d'une influence trop modeste dont l'origine pourrait être l'incertitude associée à la relation définissant cet effort. En conséquence, il pourrait s'avérer intéressant dans le cadre d'une étude ultérieure, de vérifier la véracité de cette relation et même d'envisager dans quelles mesures ce paramètre pourrait contrôler ou tout au moins influencer d'autres mécanismes tel que le rejet de soluté à l'interface S/L par exemple.

Ce phénomène conduit à un enrichissement en soluté dans la couche limite de transfert massique. Il en résulte un mécanisme de diffusion des éléments d'alliage vers le liquide, dont le déroulement pourrait être perturbé par la présence du renfort à l'interface S/L. Les fibres pourraient donc se comporter comme une barrière à l'égard de la diffusion des impuretés, d'autant plus efficace que la fraction volumique de fibres augmente au niveau du front de solidification.

Cette étude nous a permis de présenter l'influence de chacun des paramètres cités précédemment sur le phénomène d'absorption ou de rejet d'un renfort par un front de solidification plan. Bien qu'elle fournisse uniquement des tendances concernant l'évolution du comportement des fibres en fonction des variations de chaque grandeur physique, cette étude apporte des connaissances préliminaires permettant d'aborder avec plus de facilité, l'étude du phénomène d'absorption ou de rejet du renfort par un front de solidification déstabilisé. Toutefois, même si les enseignements retirés de ce premier travail sont intéressants, il n'en demeure pas moins que l'analyse du comportement d'un renfort discontinu au cours de la solidification d'un alliage d'aluminium s'avère délicate.

Le mécanisme de solidification d'un matériau composite à matrice d'alliage d'aluminium, renforcé par des fibres courtes et élaboré par rhéomoulage, met tout d'abord en jeu une croissance des globules d'aluminium  $\alpha$  autour des fibres présentes au sein du liquide.



Au fur et à mesure que la solidification progresse, les globules d'aluminium  $\alpha$  grossissent et finissent par entrer en contact avec les fibres. A ce moment là, trois mécanismes de solidification peuvent apparaître:

- un phénomène d'absorption du renfort par l'interface globule d'aluminium  $\alpha$  / liquide;
- un phénomène de rejet du renfort par l'interface globule d'aluminium  $\alpha$  / liquide;
- un phénomène de rejet des globules d'aluminium  $\alpha$  par le renfort résistant à l'avancée du front de solidification.

Les deux premiers phénomènes ont été étudiés par solidification dirigée dans le cas où l'interface S/L est plane ou quasi-plane. En revanche, le troisième mécanisme n'a pu être mis en évidence dans la mesure où le solide est ancré aux parois du creuset et ne peut être rejeté par le renfort lors d'une expérience de solidification dirigée. Toute étude ultérieure du comportement d'un renfort discontinu au voisinage d'une interface S/L devra donc prendre en compte ce nouveau phénomène d'autant que les diamètre et masse volumique des globules et des fibres étant proches, on peut aussi bien envisager le deuxième mécanisme que le troisième.

A faible fraction volumique de renfort, l'espace interfibres est grand devant le diamètre des fibres et globules. En conséquence, les trois mécanismes peuvent se développer puisque les globules d'aluminium  $\alpha$  sont susceptibles de pouvoir se déplacer à l'intérieur du réseau fibreux et subir ainsi un phénomène de rejet. Lorsque la fraction volumique de renfort est telle que l'espace interfibres approche le diamètre des globules, le troisième mécanisme ne peut plus être actif puisque les globules sont alors piégés à l'intérieur du réseau fibreux et ne peuvent donc plus se déplacer, c'est à dire être rejetés.

Il semble donc, par analogie à l'étude que nous venons de mener à son terme, que la fraction volumique pourrait être un paramètre influençant notablement le comportement d'un renfort discontinu au voisinage d'un front de solidification déstabilisé.

# ANNEXES

## ANNEXIE 1

pour le cas  $\perp$ :

$$\Delta G_{1-\perp}^2 \equiv \Delta H \cdot S_F \cdot y = \lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{F2} - G_{F1}) \cdot t_0 + \lambda_S \cdot S_F \cdot (G_{S2} - G_{S1}) \cdot t_0 = F_{F/R(\perp)} \cdot y + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}$$

--> Explicitons  $(G_{F2} - G_{F1})$  et  $(G_{S2} - G_{S1})$  par l'intermédiaire des relations (II.62) et (II.63).  $\Delta G_{1-\perp}^2$  devient :

$$\Delta G_{1-\perp}^2 \equiv \Delta H \cdot S_F \cdot y = \lambda_F \cdot S_F \cdot t_0 \cdot (G_{F1} - G_{S1}) \cdot [\exp(-k \cdot y) - 1] + \lambda_S \cdot S_F \cdot (G_{S0} - G_{S1}) \cdot t_0 = F_{F/R(\perp)} \cdot y + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}$$

--> L'expression des gradients thermiques dans la fibre et le solide associé à un phénomène de rejet (relation (II.48) et (II.50)) permet de définir une nouvelle expression de  $\Delta G_{1-\perp}^2$  :

$$\Delta G_{1-\perp}^2 \equiv \Delta H \cdot S_F \cdot y = \lambda_F \cdot S_F \cdot t_0 \cdot \left\{ G_{F0} - \frac{\alpha \cdot V_y \cdot \Delta H}{\lambda_F} - G_{S0} - \frac{(1-\alpha) \cdot V_y \cdot \Delta H}{\lambda_S} \right\} \cdot [\exp(-k \cdot y) - 1] =$$

$$\lambda_S \cdot S_F \cdot t_0 \cdot \left\{ \frac{(1-\alpha) \cdot V_y \cdot \Delta H}{\lambda_S} \right\} = F_{F/R(\perp)} \cdot y + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}$$

--> Au cours d'une période de temps  $t_0$ , le front de solidification animé d'une vitesse  $V_y$  s'est déplacé d'une distance  $y$  donc  $t_0 = y/V_y$ .  $\Delta G_{1-\perp}^2$  devient donc :

$$\Delta G_{1-L}^2 = \Delta H \cdot S_F \cdot y + \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot G_{F0} \cdot y}{V_y} - \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot y - \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot G_{S0} \cdot y}{V_y} - (1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot y \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} + [\exp(-k \cdot y)].$$

$$\left[ - \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot G_{S0} \cdot y}{V_y} + \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot y + \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot G_{S0} \cdot y}{V_y} + (1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot y \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right] - (1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot y - F_{F/R(\perp)} \cdot y$$

$$+ 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}$$

$$= y \cdot \left\{ - F_{F/R(\perp)} + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot \sigma_{SL} + \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{F0} - G_{S0})}{V_y} - (1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} + [y \cdot \exp(-k \cdot y)] \cdot \left\{ \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{S0} - G_{F0})}{V_y} \right. \right.$$

$$\left. + \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F + (1-\alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\}$$

1°) Etudions maintenant le cas où la fibre possède une conductivité thermique  $\lambda_F$  supérieure à celle du liquide: Dans ce cas, l'expression des gradients thermiques dans la fibre et le solide à vitesse de solidification nulle est telle que:

$$\{ G_{F0} = G_{L0} - G_1$$

$$\text{avec } G_2 = \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \cdot (G_{L0} - G_1) - G_{S0-\text{adjacent}}$$

$$\left\{ G_{S0}\text{-cellule élémentaire} = G_{S0}\text{-adjacent} + G_2 \right.$$

$$\text{d'où: } \left\{ G_{F0} = G_{L0} - G_1 \right.$$

$$\left\{ G_{S0}\text{-cellule élémentaire} = \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \cdot (G_{L0} - G_1) \right.$$

--> La variation d'énergie de Gibbs depuis l'état 1 vers l'état 2 devient alors:

$$\Delta G_{2-1}^1 \equiv y \cdot \left\{ -\frac{F_F}{R(\perp)} + 2 \cdot \pi \cdot r_F \cdot \sigma_{SL} + \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} - G_1) \cdot (1 - \lambda_F / \lambda_S)}{V_y} - (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + [y \cdot \exp(-k \cdot y)].$$

$$\left\{ \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} - G_1) \cdot (\lambda_F / \lambda_S - 1)}{V_y} + \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F + (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\}$$

2°) La fibre possède une conductivité thermique  $\lambda_F$  inférieure à celle du liquide.

$$\left\{ G_{F0} = G_{L0} + G_1 \right.$$

$$\left\{ G_{S0}\text{-cellule élémentaire} = \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \cdot (G_{L0} + G_1) \right.$$

--> La variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G_{1-\perp}^2$  s'exprime alors de la façon suivante:

$$\Delta G_{2-\perp}^1 \equiv y \cdot \left\{ -\frac{\mathbf{F}_{F/R(\perp)} + 2 \cdot \pi \cdot \mathbf{r}_F \cdot \sigma_{SL}}{V_y} + \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} + G_1) \cdot (1 - \lambda_F / \lambda_S)}{V_y} - (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + [y \cdot \exp(-k \cdot y)]$$

$$\left\{ \frac{\lambda_F \cdot S_F \cdot (G_{L0} + G_1) \cdot (\lambda_F / \lambda_S - 1)}{V_y} + \alpha \cdot \Delta H \cdot S_F + (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot S_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\}$$

131

pour le cas // :

$$\Delta G_{1-//}^2 \equiv \frac{2 \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot \mathbf{r}_F \cdot y}{2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot \mathbf{r}_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}}} = 2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot \mathbf{r}_F \cdot (G_{F2} - G_{F1}) \cdot t_0 + 2 \cdot \lambda_S \cdot L_F \cdot \mathbf{r}_F \cdot (G_{S2} - G_{S1}) \cdot t_0 = \mathbf{F}_{F/R(//)} \cdot y +$$

--> Par analogie au cas  $\perp$ , explicitons  $\Delta G_{F1}^2$  et  $\Delta G_{S1}^2$  par l'intermédiaire des relations (II.62) et (II.63).  $\Delta G_{1-//}^2$  devient:

$$\Delta G_{1-//}^2 \equiv \frac{2 \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot \mathbf{r}_F \cdot y}{\mathbf{F}_{F/R(//)} \cdot y + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot \mathbf{r}_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}}} = 2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot \mathbf{r}_F \cdot t_0 \cdot (G_{F1} - G_{S1}) [\exp(-k \cdot y) - 1] + 2 \cdot \lambda_S \cdot L_F \cdot \mathbf{r}_F \cdot (G_{S0} - G_{S1}) \cdot t_0 =$$

--> A l'aide des relations (II.48) et (II.50) définissant les gradients thermiques au sein de la fibre et du solide durant le phénomène de rejet, une nouvelle expression de  $\Delta G_{1-//}^2$  est obtenue:

$$\begin{aligned} \Delta G_{1-//}^2 &= 2.\Delta H.L_F.r_F.y - 2.\lambda_F.L_F.r_F.t_0 \cdot \left\{ G_{F0} - \frac{\alpha.V_y.\Delta H}{\lambda_F} - G_{S0} - \frac{(1-\alpha).V_y.\Delta H}{\lambda_S} \right\} \cdot \{\exp(-k.y) - 1\} \\ &= 2.\lambda_S.L_F.r_F.t_0 \cdot \frac{(1-\alpha).V_y.\Delta H}{\lambda_S} - F_{F/R(//)} \cdot y + 2.\sqrt{2.y.r_F.y} \cdot \sigma_{SL} \end{aligned}$$

--> De plus,  $t_0 = y/V_y$ , d'où  $\Delta G_{1-//}^2$  devient:

$$\begin{aligned} \Delta G_{1-//}^2 &= 2.\Delta H.L_F.r_F.y + \frac{2.\lambda_F.L_F.r_F.G_{F0}.y}{V_y} - \frac{2.\alpha.\Delta H.L_F.r_F.y}{V_y} - \frac{2.\lambda_F.L_F.r_F.G_{S0}.y}{V_y} - \frac{2.(1-\alpha).\Delta H.L_F.r_F.y}{\lambda_S} \\ &+ [\exp(-k.y)] \cdot \left\{ \frac{-2.\lambda_F.L_F.r_F.G_{F0}.y}{V_y} + 2.\alpha.\Delta H.L_F.r_F.y + \frac{2.\lambda_F.L_F.r_F.G_{S0}.y}{V_y} + 2.(1-\alpha).\Delta H.L_F.r_F.y \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} \\ &= 2.(1-\alpha).\Delta H.L_F.r_F.y - F_{F/R(//)} \cdot y + 2.\sqrt{2.y.r_F.y} \cdot \sigma_{SL} \end{aligned}$$

$$\Delta G_{1-//}^2 \equiv y \cdot \left\{ -F_{F/R(//)} + \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{F0} - G_{S0})}{V_y} - 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + [y \cdot \exp(-k \cdot y)] \cdot \left\{ \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{S0} - G_{F0})}{V_y} \right. \\ \left. + 2 \cdot \alpha \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F + 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}}$$

1°) La fibre possède une conductivité thermique  $\lambda_F$  supérieure à celle du liquide: par analogie au cas  $\perp$ , les gradients thermiques  $G_{F0}$  et  $G_{S0}$ -cellule élémentaire s'expriment comme suit:

$$\left\{ G_{F0} = G_{L0} - G_1 \right.$$

$$\left\{ G_{S0\text{-cellule élémentaire}} = \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \cdot (G_{L0} - G_1) \right.$$

--> La variation d'énergie de Gibbs depuis l'état 1 vers l'état 2 se résume alors à l'expression suivante:

$$\Delta G_{1-//}^2 \equiv y \cdot \left\{ -F_{F/R(//)} + \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} - G_1) \cdot (1 - \lambda_F / \lambda_S)}{V_y} - 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + [y \cdot \exp(-k \cdot y)] \cdot \left\{ \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} - G_1) \cdot (\lambda_F / \lambda_S - 1)}{V_y} + 2 \cdot \alpha \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F + 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}}$$



2°) La fibre possède une conductivité thermique  $\lambda_F$  inférieure à celle du liquide.

$$\left\{ G_{F0} = G_{L0} + G_1 \right.$$

$$\left\{ G_{S0\text{-cellule élémentaire}} = \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \cdot (G_{L0} + G_1) \right.$$

--> La variation d'énergie de Gibbs  $\Delta G_{1-//}^2$  s'exprime alors par la relation proposée ci-dessous:

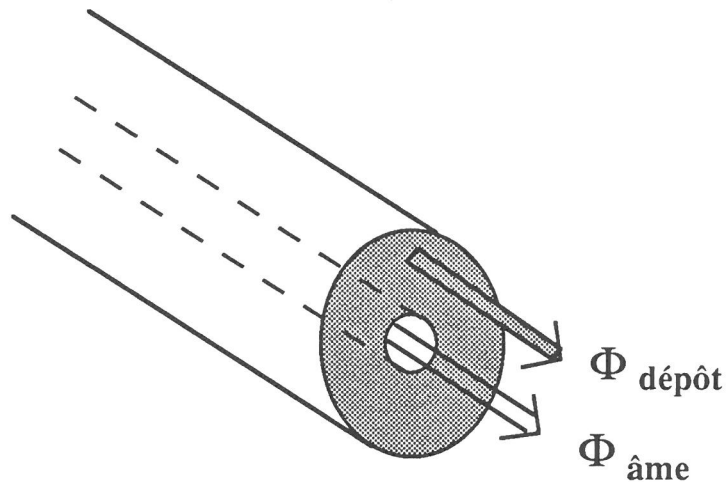
$$\Delta G_{1-//}^2 = y \cdot \left\{ -F_{F/R(//)} + \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} + G_1) \cdot (1 - \lambda_F / \lambda_S)}{V_y} - 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + [y \cdot \exp(-k \cdot y)] \cdot \left\{ \frac{2 \cdot \lambda_F \cdot L_F \cdot r_F \cdot (G_{L0} + G_1) \cdot (\lambda_F / \lambda_S - 1)}{V_y} - 2 \cdot \alpha \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F + 2 \cdot (1 - \alpha) \cdot \Delta H \cdot L_F \cdot r_F \cdot \frac{\lambda_F}{\lambda_S} \right\} + 2 \cdot \sqrt{2 \cdot y \cdot r_F \cdot y \cdot \sigma_{SL}}$$

## ESTIMATION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE LONGITUDINALE DE FIBRES REVETUES

Considérons un renfort filamentaire constitué d'une âme ( un filament de tungstène par exemple) revêtue d'un dépôt d'un matériau tel que le bore ou le carbure de silicium par exemple (Figure 1). La résistance thermique longitudinale de la fibre  $R_F$  s'exprime alors comme telle:

$$R_F = \frac{1}{\lambda_F} \cdot \frac{L_F}{S_F} \quad (1)$$

avec  $\lambda_F$  : Conductivité thermique de la fibre  
 $L_F$  : Longueur de la fibre  
 $S_F$  : Section de la fibre



**FIGURE1:** Représentation schématique des flux thermiques  $\Phi_{\text{âme}}$  et  $\Phi_{\text{dépôt}}$  au sein d'une fibre revêtue.

Les résistances thermiques du dépôt  $R_d$  et de l'âme  $R_a$  étant en parallèle, il en résulte l'expression suivante pour la résistance de la fibre:

$$\frac{1}{R_F} = \frac{1}{R_d} + \frac{1}{R_a} \tag{2}$$

Les indices F, d et a représentent respectivement la fibre, le dépôt et l'âme.

Par l'intermédiaire des relations (1) et (2), la conductivité thermique  $\lambda_F$  de la fibre s'exprime comme suit:

$$\lambda_F = \frac{\lambda_a \cdot S_a + \lambda_d \cdot S_d}{S_F} \tag{3}$$

La conductivité thermique des renforts fibreux SiC( $\sigma$ ) et Bore est répertoriée dans le tableau 1:

		caractéristiques	physiques
fibres	matériaux	diamètre ( $\mu\text{m}$ )	conductivité thermique (W/m.K)
SiC( $\sigma$ )	âme (tungtène)	1 5	174 [2]
		1 0 0	1 9
	dépôt SiC( $\beta$ )	8 5	15 [1]
Bore	âme (tungtène)	1 5	174 [2]
		1 4 0	2 9
	dépôt (Bore)	1 2 5	27 [2]

Tableau 1: Diamètre et conductivité thermique des fibres SiC( $\sigma$ ) et Bore.

## ESTIMATION DE LA CHALEUR SPECIFIQUE DE FIBRES REVETUES.

La loi des mélanges, s'appliquant à la capacité calorifique volumique  $\rho C$ , permet de définir la relation 4:

$$\rho_F \cdot S_F \cdot C_F = \rho_d \cdot S_d \cdot C_d + \rho_a \cdot S_a \cdot C_a \quad (4)$$

Il en résulte que la capacité calorifique massique  $C_F$  d'une fibre revêtue est donnée par la relation 5:

$$C_F = \frac{\rho_a}{\rho_F} \cdot \frac{S_a}{S_F} \cdot C_a + \frac{\rho_d}{\rho_F} \cdot \frac{S_d}{S_F} \cdot C_d \quad (5)$$

Le tableau 2 résume les caractéristiques physiques (diamètre et capacité calorifique massique) des fibres SiC( $\sigma$ ) et Bore.

		caractéristiques physiques		
fibres	matériaux	diamètre ( $\mu\text{m}$ )	masse volumique ( $\text{kg/m}^3$ )	chaleur spécifique ( $\text{J/kg.K}$ )
	âme (tungtène)	1 5	19300 [2]	130 [2]
SiC( $\sigma$ )		1 0 0	3 4 0 0	6 1 0
	dépôt SiC( $\beta$ )	8 5	2940 [1]	700 [1]
	âme (tungtène)	1 5	19300 [2]	130 [2]
Bore		1 4 0	2 4 6 0	9 5 9
	dépôt (Bore)	1 2 5	2310 [2]	1020 [2]

Tableau 2: Diamètre, masse volumique et chaleur spécifique des fibres SiC( $\sigma$ ) et Bore.

## REFERENCES

1- C.H ANDERSON and R. WARREN, "Silicon carbide fibres and their potential for use in composites materials", to be published in Composites.

2- handbook of chemistry.

